



# Simulation et Optimisation du Procédé d'Injection Soufflage Cycle Chaud

Jordan Biglione

## ► To cite this version:

Jordan Biglione. Simulation et Optimisation du Procédé d'Injection Soufflage Cycle Chaud. Modélisation et simulation. INSA Lyon, 2015. Français. <tel-01245472>

**HAL Id: tel-01245472**

**<https://hal.archives-ouvertes.fr/tel-01245472>**

Submitted on 17 Dec 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Thèse

# Simulation et Optimisation du Procédé d'Injection Soufflage Cycle Chaud

Présentée devant  
L'institut National des Sciences Appliquées de Lyon

Pour Obtenir  
Le grade de Docteur

Par  
**BIGLIONE Jordan**

diplômé INSA de Lyon  
(Ingénieur Mécanique GMPP - Master 2 Recherche et Matériaux Innovants)

Soutenue le 07 Octobre 2015 devant la commission d'examen

## Membres du Jury

---

HAUDIN Jean-Marc	Professeur	(Président du jury)
SCHMIDT Fabrice	Professeur	(Rapporteur)
BILLON Noëlle	Professeur	(Rapporteur)
CARROT Christian	Professeur	(Examineur)
BÉREAUX Yves	Maître de conférences HdR	(Directeur de Thèse)
CHARMEAU Jean-Yves	Professeur	(Co-Directeur de Thèse)

---

**École Doctorale MEGA de Lyon**

Laboratoire de recherche

**Laboratoire de Mécanique des Contacts et des Structures  
LaMCoS - UMR 5259**





---

## Remerciements

Durant ces trois années de thèse passées sur le site de Plasturgie de l'INSA Lyon à Oyonnax, j'ai pu bénéficier de l'aide de nombreuses personnes. Certaines ont continué leur aventure en d'autres lieux, d'autres restent.

Chacune m'a apporté ses lumières dans son domaine, et nombre de discussions ont résolu mes problèmes.

Il y a aussi ces personnes qui répondent à vos questions, souvent redondantes, concernant les démarches administratives et bon de commande.

Ces dernières personnes m'ont vraiment permis d'avancer durant ces trois ans et ont fait preuve de patience pour répondre à mes questions, et ont donné de leur temps pour résoudre certains nœuds administratifs.

Et il y a également les personnes qui vous soutiennent en dehors du cercle professionnel. Celles qui tolèrent que vous rameniez du travail le soir dans les périodes de forte activité, celles qui écoutent d'une oreille amusée vos histoires de boulot qui ne font rire que vous lors des repas de famille.

Je remercie donc en premier lieu les différents acteurs du site de plasturgie, du technicien au professeur. Chacun a apporté sa pierre à l'édifice. Merci à tous, je préfère ne pas dresser de liste de peur d'en oublier certains par mégarde.

Je tiens toutefois à remercier plus particulièrement les personnes suivantes.

Merci donc tout d'abord à Jean Balcaen, pour ces nombreuses pauses café qui tournaient bien souvent à la réunion de travail.

Merci à Isabelle Comby pour toutes ses interventions sur le plan administratif afin de faire passer les bons de commande et autres ordres de mission.

Merci à Jean-Yves Charmeaux, pour m'écraser au tennis dès que l'occasion se présente.

Merci surtout à Yves Béreaux, mon directeur de thèse qui a su me guider tout au long de cette thèse.

Enfin, merci à ma famille dont je ne citerais que les prénoms pour une question de place disponible : Killian et Mélissa, Yolaine et Joël, Tiphaine et Ludovic, Pacôme et Catherine, Aurore et Paul-Émile. Sans oublier mes nombreux neveux et nièces : Kristen, Jolan, Sélen, Léana, Bryan, Lewis, mon filleul William, Bastien, Marlon et le petit dernier Marvin.

Merci plus particulièrement à mes parents, Michel et Marie-Jeanne, d'être venu me soutenir tandis que je soutenais moi-même mes travaux. Merci d'avoir fait le déplacement pour partager cette journée à mes côtés.

Et pour finir, merci à toi Jacqueline. Car je n'en serais pas arrivé là sans ton soutien et ta présence au quotidien.



---

# Simulation et Optimisation du Procédé d'Injection Soufflage Cycle Chaud

BIGLIONE Jordan

## Résumé

Le procédé d'injection soufflage est rendu accessible aux presses d'injection standard à travers le procédé d'injection soufflage cycle chaud, sans stockage puis réchauffe de la préforme. Le but étant de rendre accessible la production de petites séries de pièces creuses à des entreprises possédant un parc machine de presse à injecter. Les pièces sont réalisées en polypropylène et sont soufflées juste après avoir été injectées. Ce processus implique que la préforme se doit d'être suffisamment malléable pour être soufflée mais suffisamment visqueuse pour éviter de se rompre durant la phase de soufflage. Ces contraintes conduisent à une fenêtre de mise en œuvre réduite, comprise entre la température de fusion du polymère et la température de cristallisation, soit le domaine où le polypropylène est à l'état amorphe et suffisamment froid pour avoir une viscosité conséquente sans cristalliser. Ce procédé cycle chaud implique des gradients de température, de grands taux d'étirages et d'importantes cinétiques de refroidissement. Des mesures de rhéométrie à l'état fondu sont réalisées pour identifier le comportement de la matière dans la plage de température du procédé, de même que des tests de calorimétrie différentielle. L'observation du procédé et l'étude de la cristallisation du matériau permettent de supposer que ce dernier reste à l'état fondu durant la phase de soufflage. Un modèle rhéologique de Cross est utilisé, avec la dépendance thermique prise en compte par une loi d'Arrhénius. Le procédé est simulé à l'aide d'un logiciel de calcul par éléments finis dédié aux écoulements de fluides complexes (POLYFLOW) dans l'espace de travail ANSYS Workbench. La géométrie autorise une approche axisymétrique, facilitant ainsi la modélisation. Le calcul transitoire est lancé sous conditions anisothermes et l'auto-échauffement est considéré. Des études de sensibilité sont réalisées et révèlent l'influence de paramètres procédé tels que le comportement du matériau, la pression de soufflage et le champ de température initial. Des mesures d'épaisseurs sont réalisées en utilisant une méthode de traitement d'image permettant l'analyse des images numérisées de pièces découpées et des images issues de tomographie X des pièces. Les résultats simulés sont comparés aux mesures expérimentales. Le modèle présente les mêmes tendances que les mesures. L'existence de déformations élongationnelles, mais aussi par cisaillement lors du soufflage après contact avec le moule, est discutée. Une boucle d'optimisation est mise en place afin de déterminer numériquement la géométrie optimale de préforme. Des points de contrôle sont placés le long de la préforme et l'algorithme d'optimisation modifie les épaisseurs à ces points.



---

# Simulation and Optimization of the Injection Blow Molding Single Stage Process

BIGLIONE Jordan

## Abstract

Single stage injection blow molding process, without preform storage and reheat, could be run on a standard injection molding machine, with the aim of producing short series of specific hollow parts. The polypropylene bottles are blown right after being injected. The preform has to remain sufficiently malleable to be blown while being viscous enough to avoid being pierced during the blow molding stage. These constraints lead to a small processing window, and so the process takes place between the melting temperature and the crystallization temperature, where the polypropylene is in his molten state but cool enough to enhance its viscosity without crystallizing. This single stage process introduces temperature gradients, molecular orientation, high stretch rate and high cooling rate. Melt rheometry tests were performed to characterize the polymer behavior in the temperature range of the process, as well as Differential Scanning Calorimetry. A viscous Cross model is used with the thermal dependence assumed by an Arrhenius law. The process is simulated through a finite element code (POLYFLOW) in the Ansys Workbench framework. The geometry allows an axisymmetric approach. The transient simulation is run under anisothermal conditions and viscous heating is taken into account. Thickness measurements using image analysis are done and the simulation results are compared to the experimental ones. The experimental measurements are done by analyzing tomography datas. The simulation shows good agreements with the experimental results. The existence of elongational strain as well as shear strain during the blowing after contact with the mold is discussed. An optimization loop is run to determine an optimal initial thickness repartition by the use of a Predictor/Corrector method to minimize a given objective function. Design points are defined along the preform and the optimization modifies the thickness at these locations. This method is compared to the Downhill Simplex Method and shows better efficiency.



# Table des matières

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>1</b>
1.1	Présentation des procédés d'injection soufflage . . . . .	2
1.1.1	Contexte de l'étude . . . . .	2
1.1.2	Différents procédés de soufflage . . . . .	2
1.2	Particularités du procédé cycle chaud . . . . .	4
1.2.1	Présentation du procédé IBMSS . . . . .	4
1.2.2	Avantages et inconvénients . . . . .	4
1.3	Enjeux de la simulation numérique du procédé . . . . .	5
1.3.1	Enjeux de la simulation numérique . . . . .	5
1.3.2	Prédictibilité . . . . .	6
1.3.3	Optimisation . . . . .	6
1.3.4	Plan général de la thèse . . . . .	6
<b>2</b>	<b>Loi de comportement et caractérisation thermomécanique</b>	<b>9</b>
2.1	Présentation des matériaux de l'étude . . . . .	10
2.1.1	Étude bibliographique : Les matériaux dans les procédés de soufflage . . . . .	10
2.2	Caractérisation thermique . . . . .	12
2.2.1	Analyse par Calorimétrie différentielle (DSC) . . . . .	13
2.2.2	DSC isotherme à différentes températures de cristallisation . .	16
2.2.3	Étude de la cristallisation sous conditions isothermes . . . . .	17
2.2.4	DSC non-isotherme à différentes vitesses de refroidissement . .	22
2.2.5	Étude de la cristallisation à vitesse de refroidissement constante	25
2.3	Comportement thermomécanique . . . . .	27
2.3.1	Étude bibliographique : Lois de comportement . . . . .	27
2.3.2	Rhéométrie dynamique . . . . .	32
2.3.3	Modèle de Cross et loi d'Arrhénius . . . . .	32
2.3.4	Comportement viscoélastique . . . . .	34
2.4	Confrontation état solide/état fondu - Approche expérimentale et modélisation de la surfusion . . . . .	40
2.4.1	Étude bibliographique : Cristallisation sous déformation . . . .	40
2.4.2	Sollicitations dynamiques :approches solide et fondue . . . . .	42
2.4.3	Influence d'un cisaillement sur la cristallisation . . . . .	44
2.4.4	Mesures DSC après mise en forme . . . . .	48
<b>3</b>	<b>Simulation numérique du procédé</b>	<b>51</b>
3.1	Présentation du modèle numérique . . . . .	52
3.1.1	Étude bibliographique : Simulation numérique des procédés de soufflage . . . . .	52



3.1.2	Présentation du procédé simulé . . . . .	53
3.1.3	Géométrie et maillage . . . . .	57
3.1.4	Méthode de résolution par éléments finis . . . . .	58
3.2	Étude de sensibilité du modèle . . . . .	62
3.2.1	Effet du maillage . . . . .	62
3.2.2	Effet du degré d'interpolation . . . . .	63
3.2.3	Effet du matériau choisi . . . . .	64
3.2.4	Effet du champ de température avant soufflage . . . . .	67
3.2.5	Effet de la pression de soufflage imposée . . . . .	68
3.2.6	Analyse des composantes du tenseur des taux de déformation . . . . .	74
3.2.7	Effet des conditions limites thermiques . . . . .	83
3.2.8	Effet des conditions de contact . . . . .	85
3.3	Résultats numériques et confrontation aux mesures expérimentales . . . . .	85
3.3.1	Résultats de la géométrie flacon . . . . .	85
3.3.2	Mesures expérimentales : méthode de numérisation des pièces découpées . . . . .	87
3.3.3	Mesures expérimentales : tomographie des pièces 3D . . . . .	88
3.3.4	Comparaison des résultats numériques et expérimentaux . . . . .	91
3.3.5	Conclusion sur la simulation numérique du procédé IBMSS . . . . .	92
<b>4</b>	<b>Optimisation numérique du procédé</b>	<b>95</b>
4.1	Optimisation : principe et objectif . . . . .	96
4.1.1	Étude bibliographique : Optimisation dans les procédés de soufflage . . . . .	96
4.1.2	Optimisation du procédé . . . . .	96
4.2	Algorithme du Simplexe . . . . .	98
4.2.1	Principe de l'algorithme du Simplexe . . . . .	98
4.2.2	Résultats de l'algorithme du Simplexe . . . . .	99
4.3	Algorithme "Prédicteur/Correcteur" . . . . .	99
4.3.1	Principe Prédicteur/Correcteur . . . . .	99
4.3.2	Résultats Prédicteur/Correcteur . . . . .	100
<b>5</b>	<b>Perspectives : Développement de l'extensométrie optique</b>	<b>105</b>
5.1	Introduction . . . . .	105
5.2	Conception de l'enceinte et des mors . . . . .	105
5.3	Montée en température de l'enceinte . . . . .	107
5.4	Premiers résultats d'extensométrie . . . . .	112
<b>6</b>	<b>Conclusion générale et perspectives</b>	<b>121</b>
<b>A</b>	<b>Mesures expérimentales des épaisseurs</b>	<b>iii</b>
A.1	Principe de la méthode . . . . .	iii
A.2	Précision de la méthode . . . . .	iv
<b>B</b>	<b>Annexes : Étude thermique</b>	<b>ix</b>
<b>C</b>	<b>Annexes : Étude rhéologique</b>	<b>xvii</b>
<b>D</b>	<b>Résultats RDA</b>	<b>xxiii</b>

# Table des figures

2.1	Représentation du PP . . . . .	11
2.2	Diagramme de la DSC du PPR3221 à $10^{\circ}\text{Cmin}^{-1}$ . . . . .	13
2.3	Résultats DSC - cycle 1 - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	14
2.4	Résultats DSC - cycle 2 - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	15
2.5	Résultats DSC - cycle 3 - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	15
2.6	Résultats DSC pour différentes températures de cristallisation - PPR3221	16
2.7	Temps d'induction pour différentes températures de cristallisation sous condition isotherme - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	17
2.8	Évolution de la fraction cristallisée au court du temps - PPR3221 . .	18
2.9	Temps de demi-cristallisation pour différentes températures de cris- tallisation sous condition isotherme - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	18
2.10	Temps de demi-cristallisation réciproques pour différentes températures de cristallisation sous condition isotherme - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	19
2.11	$\ln(-\ln(1-\alpha))$ versus $\ln(t)$ pour différentes températures d'isotherme et régression linéaire sur l'intervalle la plus pertinente - PPR3221 . .	20
2.12	$n$ versus $T$ pour les trois matériaux de l'étude . . . . .	20
2.13	$\ln(k)$ versus $T$ pour les trois matériaux de l'étude . . . . .	22
2.14	Résultats DSC pour différentes vitesses de refroidissement - PPR3221	23
2.15	Températures de début de pic et de maximum du pic pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	24
2.16	Différence entre température de début de pic et température de maxi- mum du pic pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	24
2.17	Temps écoulé entre début de pic et maximum pour différentes vi- tesses de refroidissement - échelle logarithmique - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	25
2.18	$\alpha$ fonction de la température pour différentes vitesses de refroidisse- ment - PPR3221 . . . . .	26
2.19	$\alpha$ fonction du temps pour différentes vitesses de refroidissement - PPR3221 . . . . .	26

2.20	Temps de demi-cristallisation pour différentes vitesses de refroidissement sous condition non-isotherme - échelle log-log - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	27
2.21	$\ln(-\ln(1-\alpha))$ versus $\ln(t)$ pour différentes vitesses de refroidissement - PPR3221 . . . . .	28
2.22	Courbes de viscosité obtenues à différentes températures par balayage en fréquences - PPR3221 . . . . .	32
2.23	Courbe maîtresse et la loi de Cross identifiée - PPR3221 . . . . .	33
2.24	Facteurs de glissement et la loi d'Arrhénius identifiée - PPR3221 . . . . .	34
2.25	Courbes maîtresses - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	35
2.26	Facteurs de glissement - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	35
2.27	Erreur entre valeurs expérimentales et valeurs du modèle en fonction du nombre de modes - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	36
2.28	Diagramme Cole-Cole - PPR3221 . . . . .	37
2.29	Diagramme Cole-Cole normé - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	38
2.30	Diagramme Cole-Cole et arc de cercle modèle - PPR3221 . . . . .	39
2.31	Diagramme Cole-Cole normé et arcs de cercle modèles - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	39
2.32	Évolution des module $3G'$ et $3G''$ (RDA) et $E'$ et $E''$ (DMA) - PPR3221 . . . . .	43
2.33	Évolution des fractions transformées $\alpha$ déduites des modules mesurés en RDA et DMA - PPR3221 . . . . .	44
2.34	Propriétés mécaniques normées en fonction de la température - PPR10232 - différents temps d'attente et différentes fréquences - 8% de déformation . . . . .	45
2.35	Propriétés mécaniques normées en fonction de la température - PPR3221 - différents temps d'attente et différentes fréquences - 8% de déformation . . . . .	46
2.36	Propriétés mécaniques normées en fonction de la température - MR10MX0 - différents temps d'attente et différentes fréquences - 8% de déformation . . . . .	46
2.37	Flux de chaleur sous les mêmes conditions de température que les essais RDA - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) . . . . .	47
2.38	Températures d'augmentation des propriétés mécaniques sous conditions de cisaillement - Températures de début et de maximum de pic sous conditions passives - différentes vitesses de refroidissement . . . . .	47
2.39	Photo d'un flacon en PPR3221 après prélèvement des échantillons . . . . .	48
2.40	Résultats de DSC pour les échantillons prélevés le long d'un flacon en PPR3221 ordonnés selon l'emplacement sur le flacon - décalage de $0.48W.g^{-1}$ entre chaque courbe . . . . .	49
2.41	Résultats de DSC pour les échantillons prélevés le long d'un flacon en PPR3221 ordonnés selon l'étrirage local subi par la matière - décalage de $0.48W.g^{-1}$ entre chaque courbe . . . . .	49
3.1	Géométries préforme et canaux de régulation modélisées sous Moldflow . . . . .	54
3.2	Champ de température en fin de remplissage - Simulation Moldflow 3D - $t_{remplissage} = 0.8063s$ . . . . .	55
3.3	Évolution de la température dans l'épaisseur de la préforme en fin de remplissage - Simulation Moldflow 3D - $t_{remplissage} = 0.8063s$ . . . . .	55

3.4	Les trois étapes de la simulation numérique du procédé IBMSS . . . .	56
3.5	les différentes géométrie étudiées : (a) Pilulier : hauteur moyenne= 60mm et diamètre moyen final= 50mm - (b) Pot de yaourt prototype : hauteur moyenne= 80mm et diamètre moyen final= 60mm - (c) Flacon : hauteur moyenne= 100mm et diamètre moyen final= 40mm - (d) Pot de yaourt bi-étage : hauteur moyenne= 80mm et diamètre moyen final= 60mm . . . . .	57
3.6	géométrie 2D du problème et les conditions imposées à chaque étape de la simulation numérique . . . . .	58
3.7	Géométrie maillée . . . . .	59
3.8	Sensibilité maillage : (a) maillage grossier - (b) maillage standard - (c) maillage fin . . . . .	62
3.9	Résultats sensibilité maillage : (rouge) maillage grossier - (vert) maillage standard - (bleu) maillage fin . . . . .	63
3.10	schéma des différents interpolants pour le cas d'une maille . . . . .	64
3.11	Résultats sensibilité interpolation : interpolation standard (bleu) - interpolation pauvre (rouge) . . . . .	64
3.12	Sensibilité loi de comportement - PPR3221 - cas newtonien (bleu) et cas Cross (rouge) . . . . .	65
3.13	Sensibilité matériau - Pot de yaourt prototype - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - PPR10232 (rouge) . . . . .	66
3.14	Sensibilité matériau - Pot de yaourt bi-étage - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - PPR10232 (rouge) . . . . .	66
3.15	Effet du champ de température initial - (a-1) état avant soufflage - Températures homogènes - (a-2) Premier contact - Températures homogènes - (b-1) état avant soufflage - Températures inhomogènes - (b-2) Premier contact - Températures inhomogènes . . . . .	67
3.16	Effet de la pression imposée sur le modèle de Cross : P=2.5bar (rouge) - P=12.5bar (bleu) . . . . .	68
3.17	Effet de la pression imposée sur le modèle newtonien : P=2.5bar (rouge) - P=12.5bar (bleu) . . . . .	69
3.18	Évolution de la pression durant la phase de soufflage . . . . .	70
3.19	Effet de la pression imposée sur le modèle de Cross : Pression constante (rouge) - Pression évolutive (bleu) . . . . .	70
3.20	Effet de la pression imposée sur le modèle newtonien : Pression constante (rouge) - Pression évolutive (bleu) . . . . .	71
3.21	Évolution de la préforme pendant les soufflage - Pression constante imposée - modèle de Cross . . . . .	71
3.22	Évolution de la préforme pendant les soufflage - Pression variable imposée - modèle de Cross . . . . .	72
3.23	Évolution de la préforme pendant les soufflage - Pression variable imposée - modèle newtonien . . . . .	72
3.24	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression constante - temps correspondant à l'image (b) . . . . .	75
3.25	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - temps correspondant à l'image (b) . . . . .	75

3.26	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - Glissement - temps correspondant à l'image (b) .	76
3.27	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle newtonien - Pression variable - temps correspondant à l'image (b) . . . . .	76
3.28	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression constante - temps correspondant à l'image (d) . . . . .	77
3.29	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - temps correspondant à l'image (d) . . . . .	78
3.30	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - Glissement - temps correspondant à l'image (d) .	78
3.31	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle newtonien - Pression variable - temps correspondant à l'image (d) . . . . .	79
3.32	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression constante - temps correspondant à l'image (f) . . . . .	80
3.33	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - temps correspondant à l'image (f) . . . . .	81
3.34	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - Glissement - temps correspondant à l'image (f) .	81
3.35	Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle newtonien - Pression variable - temps correspondant à l'image (f) . . . . .	82
3.36	Évolution de la température durant les différentes phases simulées du procédé - Température imposée aux limites . . . . .	83
3.37	Évolution de la température durant les différentes phases simulées du procédé - Flux de chaleur imposé aux limites . . . . .	84
3.38	Effet des conditions thermiques imposées : Températures imposées (rouge) - Flux de chaleur imposés (bleu) . . . . .	84
3.39	Évolution de la préforme pendant les soufflage - glissement à la paroi - modèle de Cross . . . . .	85
3.40	Effet des conditions de contact au moule : non-glissement (rouge) - glissement (bleu) . . . . .	86
3.41	Répartitions des températures le long du bord extérieur de la préforme avant soufflage (noir) et après soufflage (bleu) . . . . .	87
3.42	Image scannée d'une moitié de flacon . . . . .	87
3.43	Une moitié de flacon dans l'enceinte du tomographe . . . . .	88
3.44	Exemple d'image obtenue . . . . .	89
3.45	Principe d'obtention des résultats d'épaisseurs . . . . .	89
3.46	Tomographie - Répartition d'épaisseurs moyennes obtenues pour différents échantillons flacons - précision de 35 microns sur la mesure . . . . .	90

3.47	Tomographie - Répartition d'épaisseurs moyennes obtenues pour différents échantillons pots de yaourt - précision de 40 microns sur la mesure . .	90
3.48	Comparaison entre expérience (méthode d'image scannée) et simulation	92
3.49	Comparaison entre expérience (images obtenues par tomographie) et simulation . . . . .	93
4.1	Principe de l'optimisation du procédé - petits tirets pour les paramètres d'entrée de la boucle - lignes pleines pour le calcul numérique - tirets épais pour les sorties testées de la boucle . . . . .	97
4.2	Illustration du problème local . . . . .	100
4.3	évolution de la fonction objectif (axe de gauche - échelle semi-logarithmique) et évolution du coefficient C de la loi de relaxation(axe de droite) . .	101
4.4	Profil optimisé (bleu) versus profil brut (rouge) . . . . .	102
4.5	Principe de l'optimisation complète . . . . .	103
5.1	Principe de la circulation de l'air chaud dans l'enceinte . . . . .	106
5.2	Principales étapes de la conception des mors . . . . .	107
5.3	Montage de l'expérience de montée en température de l'enceinte . . .	108
5.4	Montage de l'expérience de montée en température de l'enceinte . . .	108
5.5	Évolution de la température au cours du temps - trait plein noir : Température de consigne - croix obliques bleues : sonde T1 - croix droites rouges : sonde T2 - étoiles noires : sonde de régulation . . . .	109
5.6	Répartition des températures attendue dans l'enceinte . . . . .	109
5.7	Montage de l'enceinte sur la machine de traction avec le module d'extensométrie . . . . .	110
5.8	Évolution des températures en fonction du temps - Consigne imposée à 60°C - Longueur initiale . . . . .	111
5.9	Évolution des températures en fonction du temps - Consigne imposée à 120°C - $V_{\text{traverse}} = 50\text{mm.min}^{-1}$ . . . . .	112
5.10	Évolution des températures en fonction du temps - Consigne imposée à 120°C - $V_{\text{traverse}} = 50\text{mm.min}^{-1}$ . . . . .	113
5.11	Évolution des températures en fonction du temps - Consigne imposée à 120°C - $V_{\text{traverse}} = -50\text{mm.min}^{-1}$ à 7min . . . . .	114
5.12	Exemple de placement des boîtes et données mesurées selon l'axe y .	114
5.13	Déplacements x mesurés au cours du temps sur 100 boîtes - $5\text{mm.min}^{-1}$ - caoutchouc naturel . . . . .	115
5.14	Déplacements y mesurés au cours du temps sur 100 boîtes - $5\text{mm.min}^{-1}$ - caoutchouc naturel . . . . .	115
5.15	Efforts en fonction du temps - différentes vitesses d'étirage - caoutchouc naturel . . . . .	116
5.16	Efforts en fonction du déplacement de la traverse - différentes vitesses d'étirage - caoutchouc naturel . . . . .	116
5.17	Déformation médianes en fonction du temps - $5\text{mm.min}^{-1}$ - caoutchouc naturel . . . . .	117
5.18	Coefficient de Poisson médian et effort en fonction du temps - $5\text{mm.min}^{-1}$ - caoutchouc naturel . . . . .	118
5.19	coefficient de Poisson médian en fonction du temps - différentes vitesses d'étirage - caoutchouc naturel . . . . .	118

5.20	coefficient de Poisson médian en fonction du temps - 10 répétitions à 50mm.min <sup>-1</sup> - caoutchouc naturel . . . . .	119
A.1	Formes utilisées pour tester la sensibilité de la mesure d'épaisseur . . .	v
A.2	Détection des contours des formes . . . . .	v
A.3	Mesures d'épaisseurs des images étalons - Épaisseurs théorique 8 pixels	vi
A.4	Mesures d'épaisseurs des images étalons - Épaisseurs théorique 16 pixels	vi
A.5	Mesures d'épaisseurs des images étalons - Épaisseurs théorique 32 pixels	vii
B.1	Résultats DSC pour différentes températures de cristallisation - PPR10232	ix
B.2	Résultats DSC pour différentes températures de cristallisation - MR10MX0	x
B.3	Évolution de la fraction cristallisée au cours du temps - PPR10232 . .	x
B.4	Évolution de la fraction cristallisée au cours du temps - MR10MX0 .	xi
B.5	$\ln(-\ln(1-\alpha))$ versus $\ln(t)$ pour différentes températures d'isotherme et régression linéaire sur l'intervalle la plus pertinente - PPR10232 . .	xi
B.6	$\ln(-\ln(1-\alpha))$ versus $\ln(t)$ pour différentes températures d'isotherme et régression linéaire sur l'intervalle la plus pertinente - MR10MX0 .	xii
B.7	Résultats DSC pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232	xii
B.8	Résultats DSC pour différentes vitesses de refroidissement - MR10MX0	xiii
B.9	$\alpha$ fonction de la température pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232 . . . . .	xiii
B.10	$\alpha$ fonction de la température pour différentes vitesses de refroidissement - MR10MX0 . . . . .	xiv
B.11	$\alpha$ fonction du temps pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232 . . . . .	xiv
B.12	$\alpha$ fonction du temps pour différentes vitesses de refroidissement - MR10MX0 . . . . .	xv
B.13	$\ln(-\ln(1-\alpha))$ versus $\ln(t)$ pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232 . . . . .	xv
B.14	$\ln(-\ln(1-\alpha))$ versus $\ln(t)$ pour différentes vitesses de refroidissement - MR10MX0 . . . . .	xvi
C.1	Courbes de viscosité obtenues à différentes températures par balayage en fréquences - PPR10232 . . . . .	xvii
C.2	Courbes de viscosité obtenues à différentes températures par balayage en fréquences - MR10MX0 . . . . .	xviii
C.3	Courbe maîtresse et la loi de Cross fittée - PPR10232 . . . . .	xviii
C.4	Courbe maîtresse et la loi de Cross fittée - MR10MX0 . . . . .	xix
C.5	Facteurs de glissement et la loi d'Arrhénius fittée - PPR10232 . . . .	xix
C.6	Facteurs de glissement et la loi d'Arrhénius fittée - MR10MX0 . . . .	xx
C.7	Diagramme Cole-Cole - PPR10232 . . . . .	xx
C.8	Diagramme Cole-Cole - MR10MX0 . . . . .	xxi
C.9	Diagramme Cole-Cole et arc de cercle modèle - PPR10232 . . . . .	xxi
C.10	Diagramme Cole-Cole et arc de cercle modèle - MR10MX0 . . . . .	xxii
D.1	Évolution de la température pour les différents essais RDA pour un temps d'attente de 300s (marqueurs couleurs) - Températures imposées en DSC (ligne noire) . . . . .	xxiii

D.2	Évolution de la température pour les différents essais RDA pour un temps d'attente de 30s (marqueurs couleurs) - Températures imposées en DSC (ligne noire) . . . . .	xxiv
D.3	Évolution de la température pour les différents essais RDA pour un temps d'attente de 3s (marqueurs couleurs) - Températures imposées en DSC (ligne noire) . . . . .	xxiv
D.4	Résultats RDA - PPR10232 - différentes fréquences - temps d'attente=300s	xxv
D.5	Résultats RDA - PPR3221 - différentes fréquences - temps d'attente=300s	xxv
D.6	Résultats RDA - MR10MX0 - différentes fréquences - temps d'attente=300s	xxvi
D.7	Résultats RDA - 1rad.s <sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=300s . . . . .	xxvi
D.8	Résultats RDA - 10rad.s <sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=300s . . . . .	xxvii
D.9	Résultats RDA - 100rad.s <sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=300s . . . . .	xxvii
D.10	Résultats RDA - PPR10232 - différentes fréquences - temps d'attente=30s	xxviii
D.11	Résultats RDA - PPR3221 - différentes fréquences - temps d'attente=30s	xxviii
D.12	Résultats RDA - MR10MX0 - différentes fréquences - temps d'attente=30s	xxix
D.13	Résultats RDA - 1rad.s <sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=30s . . . . .	xxix
D.14	Résultats RDA - 10rad.s <sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=30s . . . . .	xxx
D.15	Résultats RDA - 100rad.s <sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=30s . . . . .	xxx
D.16	Résultats RDA - PPR10232 - différentes fréquences - temps d'attente=3s	xxxi
D.17	Résultats RDA - PPR3221 - différentes fréquences - temps d'attente=3s	xxxi
D.18	Résultats RDA - MR10MX0 - différentes fréquences - temps d'attente=3s	xxxii
D.19	Résultats RDA - 1rad.s <sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=3s . . . . .	xxxii
D.20	Résultats RDA - 10rad.s <sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=3s . . . . .	xxxiii
D.21	Résultats RDA - 100rad.s <sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=3s . . . . .	xxxiii
D.22	Propriétés mécaniques normées versus températures - PPR10232 - différents temps d'attente et différentes fréquences . . . . .	xxxiv
D.23	Propriétés mécaniques normées versus températures - PPR3221 - différents temps d'attente et différentes fréquences . . . . .	xxxiv
D.24	Propriétés mécaniques normées versus températures - MR10MX0 - différents temps d'attente et différentes fréquences . . . . .	xxxv





# Liste des tableaux

2.1	Indicateur de prix en date d'avril 2014 : . . . . .	12
2.2	Résultats de DSC à $10^{\circ}\text{C.min}^{-1}$ : . . . . .	14
2.3	Paramètres de la loi d'Avrami déterminés sur la plage [3%-20%] : . .	21
2.4	Valeurs des paramètres de la loi puissance : . . . . .	23
2.5	Valeurs des paramètres de la loi puissance : . . . . .	28
2.6	Paramètre de modélisation du comportement des polymères de l'étude - modèle de Cross-Arrhénius : . . . . .	34
2.7	Paramètres de modélisation du comportement des polymères de l'étude - spectre de relaxation : . . . . .	37
2.8	Paramètres de modélisation du comportement des polymères de l'étude - modèle de Cole-Cole : . . . . .	38
3.1	Paramètre des différents maillages : . . . . .	62
3.2	Temps de calcul selon les interpolations : . . . . .	65
3.3	Temps depuis le début du soufflage et itérations de prise d'image : . .	73
3.4	Températures et viscosités durant le soufflage - Pression variable - Cross vs newtonien . . . . .	73
4.1	Résultats de l'algorithme "Downhill Simplex" : . . . . .	99
4.2	Résultats de l'algorithme Prédicteur/Correcteur : . . . . .	100
A.1	Étude de sensibilité des mesures d'épaisseurs : écart moyens, mini- mum et maximum : . . . . .	viii



# Chapitre 1

## Introduction

## 1.1 Présentation des procédés d'injection soufflage

### 1.1.1 Contexte de l'étude

Les travaux de thèse présentés dans ce document portent sur le procédé d'injection-soufflage. Cette thèse s'inscrit dans le cadre du projet FUI  $IS^2$  associant, autour de l'idée novatrice de rendre accessible aux presses d'injection standard ce procédé, les différents acteurs que sont JP Grosfilley, Europlastique, RunnerPlast', le Pôle Européen de Plasturgie (PEP) et l'INSA de Lyon (LaMCoS, IMP).

Ces travaux ont été, pour majorité, réalisés sur le Site de Plasturgie de l'INSA Lyon à Oyonnax. Ce site, accueillant les étudiants ingénieurs GMPP et étudiants ingénieurs GMPPA de l'INSA Lyon, bénéficie de ressources informatiques telles que des logiciels de CAO (CATIA), de modélisation et calcul numérique (ANSYS WORKBENCH, STAR CCM, ABAQUS), de calcul scientifique (MATLAB). Le Site de Plasturgie bénéficie également de moyens de caractérisation des matériaux polymère, indispensables aux recherches orientées procédé : DSC, ATG, IRTF, rhéomètre capillaire, rhéomètre dynamique à plateaux parallèles, machine de traction, étuves, plateaux chauffants. Mais aussi des machines de mise en forme sont présentes sur le site : presse à injecter, extrudeuse bi-vis, rotomouleuse, RTM.

Les moyens à disposition, ainsi que l'expertise et l'expérience des différents intervenants présents sur le site, ont largement contribué au bon déroulement de cette thèse.

Avant de présenter plus en avant les présents travaux, un rapide tour d'horizon des procédés de mise en forme par soufflage est proposé.

### 1.1.2 Différents procédés de soufflage

L'un des procédés de soufflage le plus connu, et le plus ancestral, est le soufflage de verre. Dans ce procédé, les souffleurs de verre donnent forme au verre, alors en fusion. Le soufflage peut être réalisé à l'aide d'un moule pour s'assurer de la bonne conformation externe de la pièce, ou bien en soufflage libre où seul le talent de l'artisan s'exprime.

Avec l'émergence des matériaux polymères, vient le développement de procédés de mise en forme faisant intervenir le soufflage. Le soufflage est utilisé pour la mise en forme de pièces creuses. Le procédé d'injection classique peut réaliser des pièces creuses, à condition de pouvoir les démouler. Pour des pièces comme des bouteilles, le démoulage n'est pas possible car la partie permettant le moulage interne ne pourrait être retirée à moins de détruire la pièce moulée. Pour certaines pièces creuses, un démoulage en force est possible en se reposant sur la résistance élastique de la pièce moulée mais cela reste limité dans son application. La solution est donc de mouler dans un premier temps une préforme, facilement démoulable, puis de déformer la préforme afin que cette dernière épouse les formes du moule de la pièce finale.

Dans le cadre de la fabrication de bouteilles de shampoing ou autre flacons souples pour la cosmétique, le procédé d'extrusion soufflage est utilisé. Une paraison est extrudée en continu puis est ensuite cycliquement pincée dans un moule en

sortie de filière et est soufflée pour venir épouser les formes du moule. La paraison remplace ici la préforme. Le pincement de la paraison implique un état de surface peu esthétique à l'endroit du pincement et nécessite une opération supplémentaire pour ébavurer cette zone.

Le procédé d'extrusion gonflage peut également être cité et est utilisé pour produire des gaines et des films. Ces derniers sont extrudés et sont continuellement gonflés en sortie de filière. Les gaines et films produits -monocouches ou multicouches- sont d'épaisseur faible, dépassant rarement les 0.25mm.

Le procédé d'injection-étirage-soufflage est utilisé pour mettre en forme des bouteilles d'eau par exemple. Les préformes sont dans un premier temps injectées puis stockées. Ensuite, elles sont réchauffées puis étirées et soufflées dans une machine dédiée. Le soufflage est réalisé par la pression exercée par un débit d'air à l'intérieur de la préforme. Pour certaines applications, l'air peut être remplacé par un autre fluide, comme de l'eau dans le cadre de l'étirage soufflage de bouteille d'eau, procédé présenté dans les travaux de **Zimmer et collab. (2015)**. Ceci permettant de sauter une étape, la mise en forme de la bouteille et le remplissage de la bouteille ayant lieu simultanément. Cependant, les propriétés thermiques de l'eau ne sont pas identiques à celles de l'air et l'utilisation de l'eau favorise les échanges de calories avec la préforme, modifiant ainsi la qualité de la bouteille finale.

Le procédé d'injection soufflage est identique au précédent procédé, à l'exception qu'il n'introduit pas de phase d'étirage via une canne d'étirage, la préforme présentant une hauteur proche de la pièce finale. Le soufflage seul est alors suffisant pour mettre en forme la pièce finale.

Dans tous ces procédés, la préforme ou la paraison doivent être déformables durant la phase de soufflage ou de gonflage. Les matériaux polymère utilisés doivent donc être mis en forme dans une gamme de température où ils sont malléables. Selon le matériau utilisé, cette plage de température diffère, et le comportement du matériau sous sollicitation est propre à chaque matériau également.

La question du choix du matériau, voire des matériaux, dépend de l'utilisation du produit final. Pour une application dans le domaine alimentaire, la pièce finale devra offrir des propriétés barrières données. **Lange et Wyser (2003)** présentent un tour d'horizon des technologies barrière pour le compte de la société Nestlé. Le PET présente de bonnes propriétés barrières contre l'oxygène et de moyennes contre la vapeur d'eau. Le PP a quant à lui de mauvaises propriétés barrière contre l'oxygène et de bonnes contre la vapeur d'eau. Si la pièce à former est un container rigide, l'ajout d'une couche de polyamide (PA) est conseillée pour améliorer les propriétés finales de la pièce, qu'elle soit en PET ou en PP. De plus, les propriétés barrières du PET peuvent être améliorées en ajoutant de la silice dans la formulation du matériau, mais cela se fait au détriment de la transparence du matériau.

Il est donc important de bien identifier les contraintes auxquelles devra répondre la pièce finale, aussi bien d'un point de vue hygiène qu'esthétique.

D'après les travaux de **Champin (2007)**, le PET est choisi pour la mise en forme de bouteille car la cristallisation induite lors du procédé conduit à un renforcement des propriétés mécaniques, permettant ainsi à la bouteille de supporter les 3 bars de pression des boissons gazeuses. De plus, les cristaux induits sont de forme élançée et très fins, et leur taille inférieure à la longueur d'onde du spectre visible assure la transparence de la pièce finale, bien que le matériau soit semi-cristallin.

Les propriétés mécaniques des PP copolymères statistiques sont inférieures à

celles du PET, de même que leurs propriétés barrière aux gaz, et ils seraient donc moins adaptés à la mise en forme de bouteille servant à contenir des boissons gazeuses. Mais leurs prix étant plus accessibles, et leurs mises en formes demandant moins d'énergie car ils sont à l'état fondu à des températures inférieures que le PET, ils sont donc plus attrayants pour la mise en forme de pièces ayant un cahier des charges moins contraignant.

## 1.2 Particularités du procédé cycle chaud

### 1.2.1 Présentation du procédé IBMSS

Le procédé IBMSS (Injection Blow Molding Single Stage) est le procédé d'injection soufflage cycle chaud. La technologie innovante du projet  $IS^2$  permet de rendre accessible ce procédé à tout possesseur d'une presse à injecter. Là où le procédé conventionnel d'injection étirage-soufflage nécessite d'investir dans une machine dédiée,  $IS^2$  ne demande qu'un investissement dans un moule. Ce moule, à base rotative, a à charge l'injection des préformes et le soufflage de celles-ci.

L'intérêt de cette technologie est de permettre à des PME spécialisées dans l'injection de pièces plastiques, et possédant donc déjà un parc machine de presse à injecter, de se diversifier à moindre coût dans la production de pièces creuses, comme des petits flacons ou des pots de yaourt. Le but de ce procédé n'est pas de concurrencer l'industrie de la bouteille, mais bien de se placer sur la production de petites et moyennes séries de pièces spécifiques.

En ces temps de crise, où les investissements se doivent d'être mûrement réfléchis, et à l'heure où le marché des pièces automobiles est de plus en plus exigeant, la technologie  $IS^2$  offre donc l'opportunité à ces PME de se diversifier et de moins dépendre du marché automobile par exemple.

Lors de phases de mise au point de cette technologie, le moule prototype était un moule mono-empreinte. Un deuxième moule prototype consiste en un moule bi-empreinte. Le dernier moule produit, dans l'optique d'être un moule industrialisable, est un moule bi-étages huit empreintes. Au début de ce projet, plusieurs matériaux ont été testés : des polyéthylène téréphtalates (PET) fournis par EASTMAN (principalement la gamme Durastar) et des polypropylènes (PP) copolymères d'éthylènes statistiques (PPR) fournis par Total.

### 1.2.2 Avantages et inconvénients

Les avantages de cette technologie sont principalement l'investissement minime pour démarrer une production. La préforme étant soufflée immédiatement après avoir été injectée, il n'est pas nécessaire d'investir dans une logistique de stockage. Il n'est pas non plus nécessaire de réchauffer la préforme car elle est soufflée alors qu'elle est en train de refroidir. La définition des paramètres du procédé est telle que la préforme est encore suffisamment chaude pour pouvoir être mise en forme par soufflage.

Les inconvénients de cette technologie découlent comme bien souvent de ses avantages. La qualité finale de la pièce dépend directement du bon calibrage de la phase d'injection en amont. Les phases de maintien et de refroidissement post-injection et donc pré-soufflage vont directement impacter la qualité de la pièce finale. Un refroidissement trop long ne conduira à une préforme que partiellement, voire non déformable car trop froide par endroit. Une trop grande hétérogénéité du champ de température pré-chauffage induira un déséquilibre lors du soufflage. L'absence de phase de réchauffage implique que la fenêtre de température du procédé n'est pas totalement contrôlable. Ceci limite donc le choix matériau, car certains matériaux ont une fenêtre de mise en forme très étroite et incompatible avec ce procédé. Par exemple, les PET testés en phase de mise au point n'étaient pas compatibles avec le procédé. Des pièces étaient formées de manière ponctuelle mais un fonctionnement cyclique n'était pas envisageable car le PET nécessite de parfaitement maîtriser la thermique du procédé. Or la thermique pré-soufflage est une conséquence directe des paramètres thermiques de la phase d'injection et ne peut-être directement pilotée. Un dernier inconvénient repose dans la diversité des géométries productibles. Les dimensions des pièces sont limitées par l'espace disponible sur presse. Les pièces produites dans le cadre de ce projet ne dépassent pas les 100mm de haut. Et l'absence d'étirage lors du procédé impose une géométrie de préforme la plus proche possible de la géométrie finale.

## 1.3 Enjeux de la simulation numérique du procédé

### 1.3.1 Enjeux de la simulation numérique

De nos jours, la puissance de calcul des ordinateurs n'a cessé de croître, ouvrant ainsi la voie à des modélisations numériques de plus en plus complexes.

Les outils numériques sont aujourd'hui indispensables. Du simple traitement de données à la modélisation d'un phénomène physique complexe, l'outil numérique permet de gagner en vitesse et en fiabilité.

Les questions de la protection de l'environnement et de la juste utilisation des ressources énergétiques encouragent l'industrie à avoir de plus en plus recours à l'outil numérique. Il y a une trentaine d'années, un procédé était dimensionné par une procédure d'essai/correction, les paramètres de mise en forme étant modifiés selon l'expertise du monteur-régleur. La matière utilisée était alors sacrifiée et le temps sur presse s'accumulait, sans compter les retouches des outillages qui induisait une nouvelle itération dans la boucle de mise au point du procédé. Aujourd'hui, il est nécessaire de tendre vers moins de gaspillage, moins d'empirisme et plus de contrôle. Les simulations numériques permettent d'accompagner la mise au point des outillages, en proposant une gamme de paramètres optimaux, écartant numériquement les jeux de paramètres les plus improbables. La phase de mise au point est alors purement numérique. La matière est ainsi économisée et les moyens de production ne sont pas monopolisés.

Mais pour que l'outil numérique accompagne la phase de mise au point, le modèle doit être prédictible.



### 1.3.2 Prédicibilité

La modélisation numérique a en effet pour but d'être la plus fidèle possible afin d'assister efficacement la mise au point d'outillage, le réglage des machines et la conception des pièces. Avec la puissance de calcul actuelle et la grande diversité de logiciels de modélisations des différentes physiques, l'outil numérique est de plus en plus présents dans l'industrie. Mais il est nécessaire de bien construire le modèle utilisé. Les outils numériques restent des outils, et il ne suffit pas de tenir une scie dans les mains pour savoir découper droit. Les outils numériques doivent être réglés. Des paramètres sont à renseigner.

Il est important d'identifier la(les) physique(s) mise(s) en jeu dans le procédé à modéliser :

- Le temps doit-il intervenir ?
- La température évolue-t-elle ?
- Le matériau subit-il un changement de phase ?
- Le matériau est-il hyperélastique ? Élastoplastique ? Visqueux ? Viscoélastique ?

Une fois les réponses à ces questions apportées, il faut renseigner les paramètres impliqués dans la physique du modèle et au besoin les identifier aux préalables via des essais de caractérisation.

La prédictibilité du modèle dépend de la pertinence de la physique choisie, des paramètres d'entrée renseignés et du poids des hypothèses faites lors de la construction du modèle.

### 1.3.3 Optimisation

Une fois le modèle établi et prédictif, il est alors intéressant de l'utiliser dans une boucle d'optimisation afin de déterminer un jeu de paramètres optimum pour un objectif donné.

L'optimisation peut avoir différents objectifs, couplés ou non. Un problème classique est de chercher la géométrie optimale d'une pièce, avec pour contrainte un poids minimal, c'est-à-dire le moins de matière possible, pour une tenue mécanique en accord avec le cahier des charges.

L'optimisation peut également reposer sur la recherche de paramètres de mise en forme pour un temps de cycle minimum et un bilan énergétique le plus faible possible.

De nombreux algorithmes d'optimisation sont disponibles, bien souvent déjà accessibles dans les logiciels de simulation numérique. Ces outils sont à manier avec précaution et il est nécessaire de bien identifier ce qui se cache derrière ces boîtes noires.

### 1.3.4 Plan général de la thèse

Les travaux présentés par la suite porteront donc dans un premier temps sur la caractérisation thermo-mécanique des matériaux de l'étude.

Dans quel état le matériau est-il soufflé ? Pour répondre à cette question, la cristallisation des matériaux sera étudiée afin de déterminer si le phénomène de

cristallisation intervient avant, pendant, ou durant le soufflage. Car si cristallisation il y a, la caractérisation du comportement mécanique s'en trouvera impactée.

Quelle est, dans les gammes de températures du procédé, la réponse aux sollicitation du matériau ? Répondre à cette question permet de d'identifier le comportement du matériau, puis de choisir une loi rendant compte de ce comportement, qui sera ensuite utilisée dans le modèle numérique.

Ensuite, le modèle numérique sera détaillé. Les différentes géométries simulées seront présentées, ainsi que le principe du modèle. Le but ici est de retranscrire numériquement la réalité du procédé, aussi bien géométrique, que thermique et mécanique. Cette phase nécessite d'identifier les axes majeurs du procédé, et de savoir quels sont les aspects qu'il est légitime de modifier, voire de négliger, par le biais d'hypothèses.

Une fois le modèle présenté, une étude de sensibilité sera présentée. Le but étant d'identifier la variabilité du modèle. Certains paramètres seront plus déterminants que d'autre. Identifier l'effet de ces paramètres permet d'identifier ceux qu'il faudra renseigner avec le plus de soin pour minimiser les sources d'erreur du modèle. L'étude de sensibilité permet également de tester la fiabilité du modèle : le sens des variations du modèle doit être physique. Si ce n'est pas le cas, c'est que le modèle n'a pas été construit correctement et qu'il est nécessaire de revoir certaines hypothèses faites au préalable.

Pour terminer sur la partie modélisation numérique, une confrontation des épaisseurs simulées avec des mesures expérimentales des épaisseurs sur des pièces prélevées lors de phase de mise au point du procédé est réalisée. Deux méthodes de mesures des épaisseurs seront présentées et la comparaison avec les épaisseurs simulées permettra de savoir comment le modèle se place par rapport à la réalité. Une telle démarche est nécessaire afin d'avérer la prédictibilité du modèle.

Finalement, une fois le modèle établi et sa prédictibilité éprouvée, l'optimisation numérique du procédé sera présentée. Deux algorithmes d'optimisation seront utilisés et les avantages et inconvénients de chacun seront identifiés. Un regard critique sera porté sur la solution numériquement optimale en se posant la question de la faisabilité de cette solution.

Pour finir, la conclusion de ces travaux sera proposée, et des perspectives présentées.



## Chapitre 2

### Loi de comportement et caractérisation thermomécanique

## 2.1 Présentation des matériaux de l'étude

### 2.1.1 Étude bibliographique : Les matériaux dans les procédés de soufflage

Le procédé d'injection soufflage cycle chaud (*Injection Blow Molding Single Stage* en anglais : IBMSS) est un procédé innovant, et de ce fait peu présent dans la littérature sur les procédés d'étirage-soufflage. De nombreux enseignements peuvent cependant être tirés de la lecture des études portant sur le procédé d'injection étirage-soufflage (*Injection Stretch Blow Molding* en anglais : ISBM) de pièces en polymère. Dans le cas du procédé conventionnel d'ISBM, le polymère utilisé est le plus souvent le PolyÉthylène Téréphtalate (PET).

Le PET est choisi en partie pour sa faculté à durcir sous déformation (strain-hardening behavior), lui permettant de résister durant le procédé. La phase d'étirage oriente la matière, provoquant le renforcement de ses propriétés mécaniques. La préforme étirée est ensuite soufflée et le durcissement sous déformation couplé à l'orientation moléculaire permet l'application de hauts étirages à la matière.

**Huang et collab. (2007)** ont étudié la déformation de préformes en PET lors du procédé standard d'étirage-soufflage à l'aide d'un moule transparent. Les images obtenues sont analysées et l'évolution de la déformation de la préforme est effectivement observable. Il est mis en avant que le modèle de Buckley pourrait ne pas être adapté dans ce procédé car de grandes déformations et de grandes vitesses de déformations sont mises en jeu. Trois types d'évolution de la préforme sont distingués durant le soufflage pour différents temps de retard au soufflage (temps où la préforme est seulement étirée). L'apparition de ces différents modes de déformation est attribuée à la compétition entre soufflage et étirage, représentée par un gradient entre contrainte longitudinale et contrainte circonférentielle.

La visualisation de la déformation du matériau in-situ est la plus pertinente des méthodes pour pouvoir juger de la validité des modèles utilisés.

**Bendada et collab. (2005)** ont quant à eux visualisé l'évolution de la température durant la mise en forme de bouteilles par extrusion-soufflage, aussi bien dans la pièce soufflée que dans le moule. Ils ont mis en avant le rôle prédominant du refroidissement sur la qualité des pièces finales. Deux matériaux sont utilisés : un PolyÉthylène haute densité (PEhd) adapté aux procédés de soufflage, et un polyéthylène obtenu à l'aide de la technologie métallocène (mPE). Les différences entre ces deux matériaux s'expriment déjà dans l'évolution des épaisseurs le long de la paraison : le PEhd présente un gonflement plus important en sortie de filière que le mPE, conduisant à une distribution des épaisseurs non homogène le long de la paraison. Il apparaît que la distribution de température est directement liée à l'entrefer en sortie de filière, donc à l'épaisseur de la paraison. De plus, la température ne dépend pas de la pression de soufflage appliquée au matériau. Une comparaison de la géométrie finale de la pièce après démoulage avec la géométrie du moule pour différents temps de refroidissement dans le moule montrent l'impact d'un champ de température non-uniforme sur le retrait de la matière après démoulage. Un démoulage après un temps de refroidissement trop court conduit à un champ de température hétérogène, et de fait à des retraits hétérogènes, la géométrie finale de

la pièce n'étant plus en accord avec la géométrie du moule. Cet effet est plus visible pour le PEhd que pour le mPE.

Dans le cadre du procédé IBMSS, il n'y a pas de phase d'étirage sous l'action d'une canne. Les sollicitations mécaniques diffèrent donc du ISBM conventionnel. De plus, ce procédé innovant ne permet pas de contrôler la température avant soufflage comme cela peut être le cas en ISBM. La température au sein de la préforme avant soufflage est une conséquence directe de la phase d'injection précédente. Des gradients de température apparaissent dans la préforme et induisent de ce fait une certaine hétérogénéité dans le comportement de la matière pendant la phase de soufflage. La fenêtre de mise en œuvre thermique du PET est très étroite et ne saurait se satisfaire de cette incertitude intrinsèque au procédé présenté. C'est pourquoi le PP a été choisi dans cette étude. Le PP est un des principaux polyoléfines industriels. Le terme polyoléfines désigne les matériaux résultant de la polymérisation d'oléfines, c'est-à-dire de monomères hydrocarbonés insaturés dont la formule générale est  $-(CH_2 - CRR')_n-$ , où R et R' peuvent être l'atome d'hydrogène ou les radicaux alkyles apolaires  $CH_3$ ,  $CH_2 - CH_3$ ,  $CH_2 - CH(CH_3)_2$ . La **figure 2.1** montre la représentation du PP.

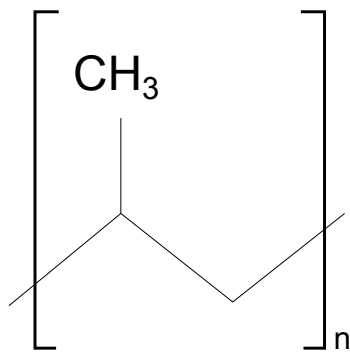


FIGURE 2.1 – Représentation du PP

Le PolyPropylène (PP) est plus souvent utilisé que le PET dans le procédé d'injection, mais il est bien moins présent dans les procédés d'injection soufflage. Les polymères utilisés dans cette étude ne sont pas des PP homopolymères mais des copolymères aléatoires, c'est-à-dire des PP copolymérisés éthylène. Les propriétés générales du PP sont présentées par **Duval (2004)**, où il est précisé que les copolymères PP sont plus transparents et plus résistants aux chocs que les PP homopolymères, mais leurs modules d'Young, leurs températures de fusion et leurs densités sont plus basses. Les PP copolymères aléatoires sont constitués de chaînes macromoléculaires composées en majorité de motifs de propylène et de quelques motifs d'éthylène. C'est cette présence d'éthylène dans la formulation qui offre une plus grande flexibilité aux chaînes de PP. Cette propriété est de première importance dans les procédés de mise en forme mettant en jeu de grands étirages.

Les PP copolymères statistiques font partie des polymères thermoplastiques semi-cristallins. L'utilisation de polymères semi-cristallins implique une température de mise en forme supérieure à la température de cristallisation, où la matière est alors dans son état amorphe. La température de transition vitreuse du PPR3211, par exemple, est de l'ordre de  $-13^{\circ}\text{C}$ . Sa température de fusion quant à elle avoisine les  $150^{\circ}\text{C}$ . Ces valeurs varieront, pour les PP copolymères statistiques, selon le taux d'éthylène dans la formulation.

**Thevenon et Fulchiron (2013)**, **Thevenon et Fulchiron (2014b)** et **Thevenon et Fulchiron (2014a)** ont étudié la morphologie de PP isotactiques et son évolution au voisinage de la température de fusion, tout en restant sous cette dernière, sous étirage uniaxial. Ces études soulignent l'effet de la vitesse de refroidissement et l'orientation due à la déformation sur l'évolution de la morphologie. La microstructure des copolymères PP aléatoires est différente de celle des PP isotactiques du fait de la présence d'éthylène qui casse la monotonie des motifs de

propylène dans les chaînes macromoléculaires. Le comportement sous déformation du PET et du PP est différent également. De par son caractère rhéofluidifiant, le PP voit sa viscosité diminuer sous cisaillement. Supposant qu'il est également rhéofluidifiant sous sollicitation élongationnelle, qui est le mode de déformation majoritaire dans le procédé IBMSS, la viscosité du PP doit alors être suffisamment élevée pour que même sous déformation, c'est-à-dire en diminuant, elle soit assez haute pour résister à la pression d'air de soufflage.

Pour cette étude, trois PP copolymères aléatoires différents ont été choisis : le PPR10232, le PPR3221 et le MR10MX0.

Le PPR10232 est un copolymère PP de grade injection, avec un Melt Flow Index (MFI) de 40g/10min à 230°C sous 2.16kg. Sa fiche technique renseigne une contrainte au seuil de 28MPa, une déformation avant seuil de 10% et une température de fusion de 147°C. Il offre une grande transparence et un bon état de surface et est formulé pour l'injection.

Le PPR3221 est un copolymère PP de grade soufflage, avec un MFI de 1.8g/10min à 230°C sous 2.16kg. Sa fiche technique renseigne une contrainte seuil de 35MPa, une déformation avant seuil inférieure à 15%. Il offre une grande résistance à l'impact, une grande transparence par le biais d'agent favorisant cette propriété et est formulé pour l'injection soufflage.

Le MR10MX0 est un copolymère PP métallocène de grade intermédiaire, en regard des deux précédents matériaux, avec un MFI de 10g/10min à 230°C sous 2.16kg. Sa fiche technique renseigne une contrainte au seuil de 31MPa, une déformation avant seuil de 10% et une température de fusion de 140°C. Il offre une bonne qualité de moulage, une très bonne transparence, brillance et de très bonnes propriétés organoleptiques. Il est formulé pour l'injection, l'injection soufflage, l'injection étirage-soufflage et l'extrusion soufflage.

Un indicateur du prix matière daté sur la période d'avril 2014 est renseigné pour chaque matière dans le **tableau 2.1**. Ces indicateurs sont basés sur :

- 8.8g la pièce
- 4 millions de pièces à l'année

Soit 35.2 tonnes l'année à raison de 2 palettes par mois.

TABLE 2.1 – Indicateur de prix en date d'avril 2014 :

Matières	PPR3221	PPR10232	MR10MX0
Prix [€/tonne]	1780	1780	1915

## 2.2 Caractérisation thermique

La modélisation du comportement du matériau est de première importance pour toute étude de simulation numérique de procédés de mise en forme. Cependant, les caractérisations, c'est-à-dire les expériences permettant d'identifier les paramètres des lois choisies, doivent être menées dans des conditions proches des conditions du procédé. La connaissance des températures mises en jeu lors du procédé, ainsi que la pression de soufflage imposée sur la préforme est déterminante.

**Kamal et collab. (1982)** se propose d'étudier l'anisotropie et les dimensions

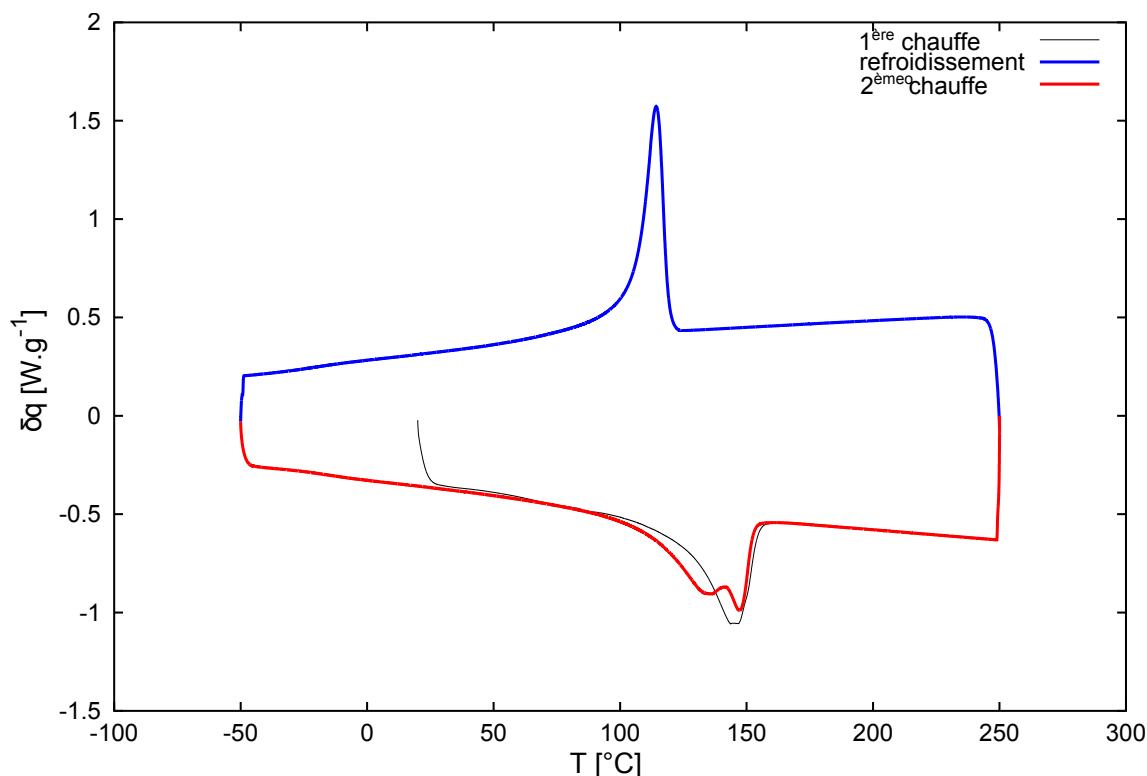


FIGURE 2.2 – Diagramme de la DSC du PPR3221 à  $10^{\circ}\text{Cmin}^{-1}$

de bouteilles de Polyéthylène haute densité (PEhd) mises en forme par extrusion-soufflage. À travers les mesures de répartition d'épaisseur, de cristallinité, de densité, des propriétés mécaniques et optiques, il apparaît qu'un procédé déséquilibré conduit à des gradients d'épaisseur dans la direction circonférentielle, engendrant de l'anisotropie car un différentiel de refroidissement apparaît, amenant un gradient de cristallinité et résultant dans des différences de propriétés mécaniques et optiques au sein de la pièce finale.

Pour caractériser le comportement des matériaux de l'étude, les moyens expérimentaux à disposition sont présentés par la suite.

### 2.2.1 Analyse par Calorimétrie différentielle (DSC)

La **figure 2.2** représente le résultat d'une expérience de DSC réalisée sur la machine TA instrument Q20 à  $10^{\circ}\text{C.min}^{-1}$  avec un échantillon de PPR3221. L'essai se décompose en trois cycles. Le premier cycle est une chauffe allant de température ambiante à  $250^{\circ}\text{C}$ , le second cycle est un refroidissement allant de  $250^{\circ}\text{C}$  à  $-50^{\circ}\text{C}$  et le troisième cycle est une seconde chauffe allant de  $-50^{\circ}\text{C}$  à  $250^{\circ}\text{C}$ .

Les deux pics présents lors de la fusion dans la seconde chauffe sont la signature de la présence de deux types de structures dans la morphologie du PP formées sous cristallisation passive durant la phase de refroidissement. Ceci a également été constaté dans les travaux de thèse de **Devaux (2003)**. Les deux types de morphologie correspondent aux lamelles radiales et tangentielles. Les lamelles tangentielles correspondent au pic à la température la plus élevée, et les lamelles radiales correspondent donc au pic à la température plus basse. Une enthalpie de fusion de



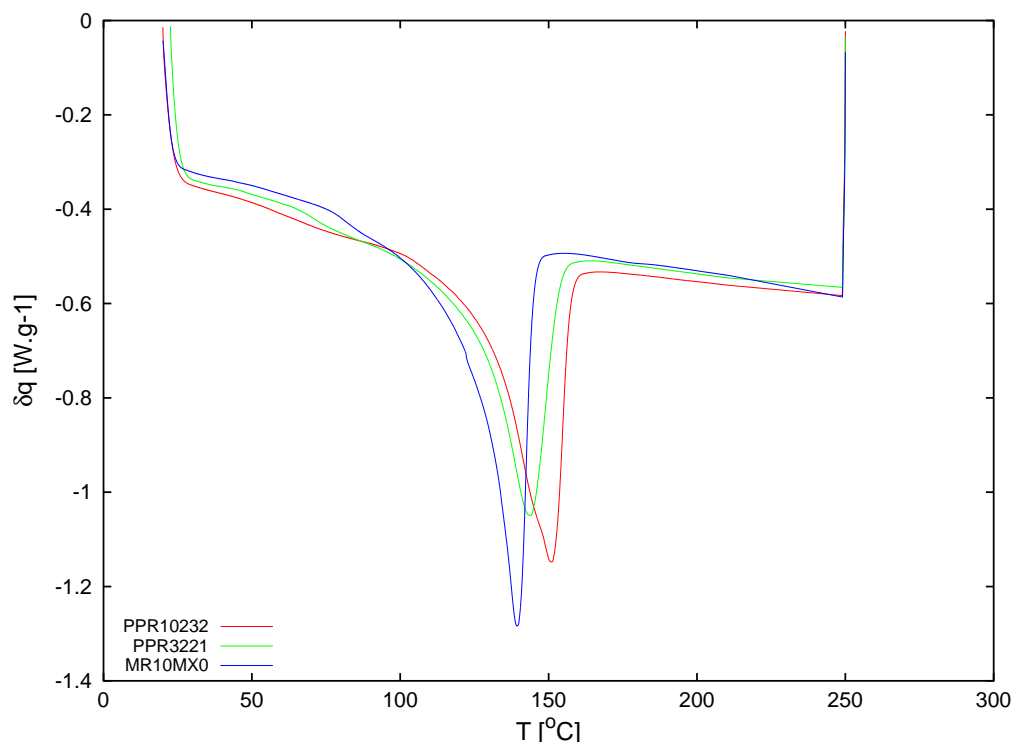


FIGURE 2.3 – Résultats DSC - cycle 1 - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

$71.75\text{J.g}^{-1}$  est mesurée lors de la première chauffe. En supposant que l'enthalpie de fusion de référence est de  $165\text{J.g}^{-1}$  (valeur choisie par **Duffo et collab. (1995)**), un taux de cristallinité de 44% est calculé.

Le même traitement est réalisé pour les deux autres matières du projet. Les trois cycles pour les trois polymères sont présentés **figures 2.3, 2.4, 2.5** L'analyse des résultats permet l'identification des propriétés présentées dans le **tableau 2.2**.

TABLE 2.2 – Résultats de DSC à  $10^\circ\text{C.min}^{-1}$  :

	Cristallisation $T_c$ [°C]	Fusion $T_f$ [°C]	Taux de cristallisation $\chi_c$ [%]
PPR10232	119	149	45
PPR3221	113	148	44
MR10MX0	111	139	46

Les taux de cristallinité de ces trois polymères sont quasi-identiques. La température de fusion des PPR3221 et PPR10232 sont très proches. Le MR10MX0 possède une température de fusion plus basse, de même qu'une température de cristallisation inférieure à celle des deux autres matériaux.

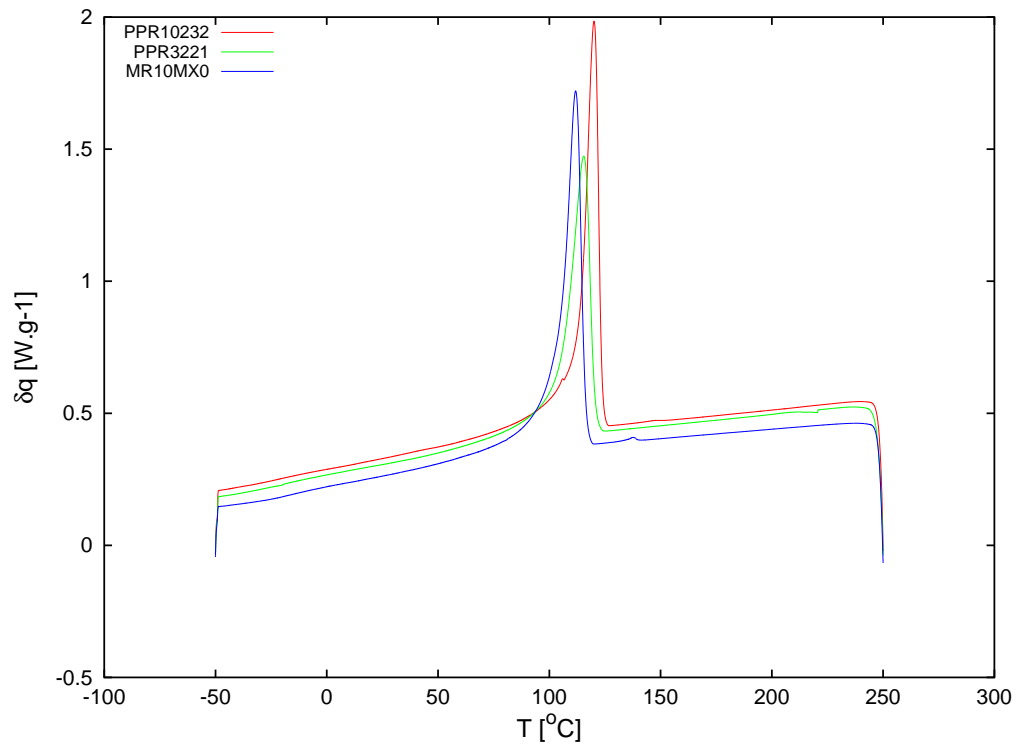


FIGURE 2.4 – Résultats DSC - cycle 2 - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

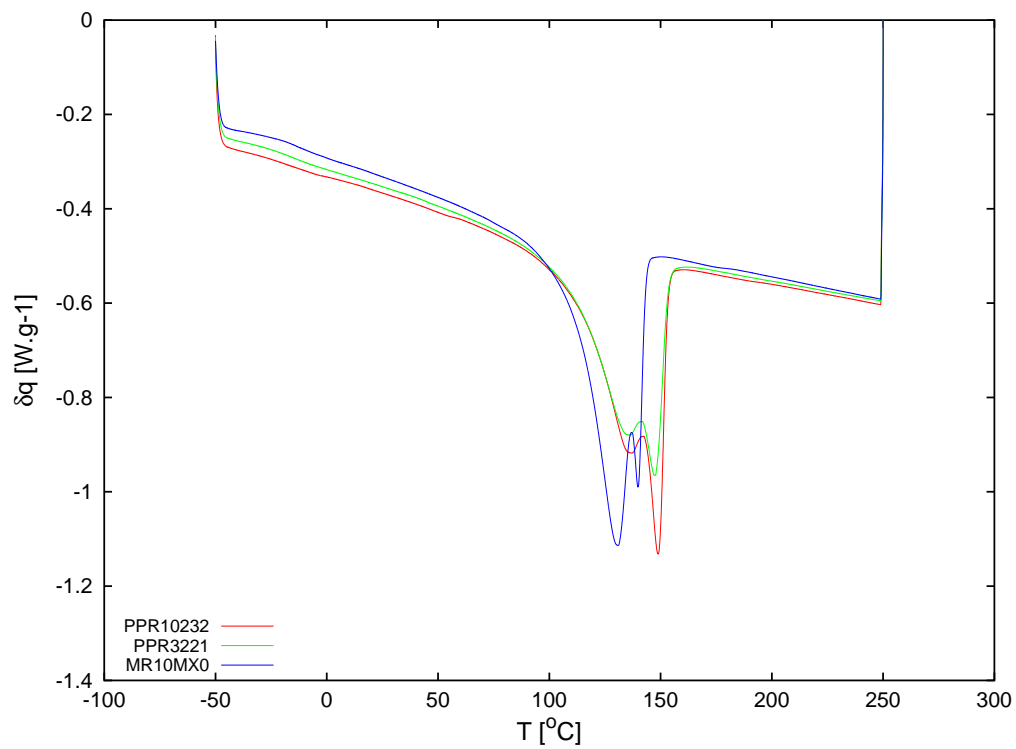


FIGURE 2.5 – Résultats DSC - cycle 3 - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

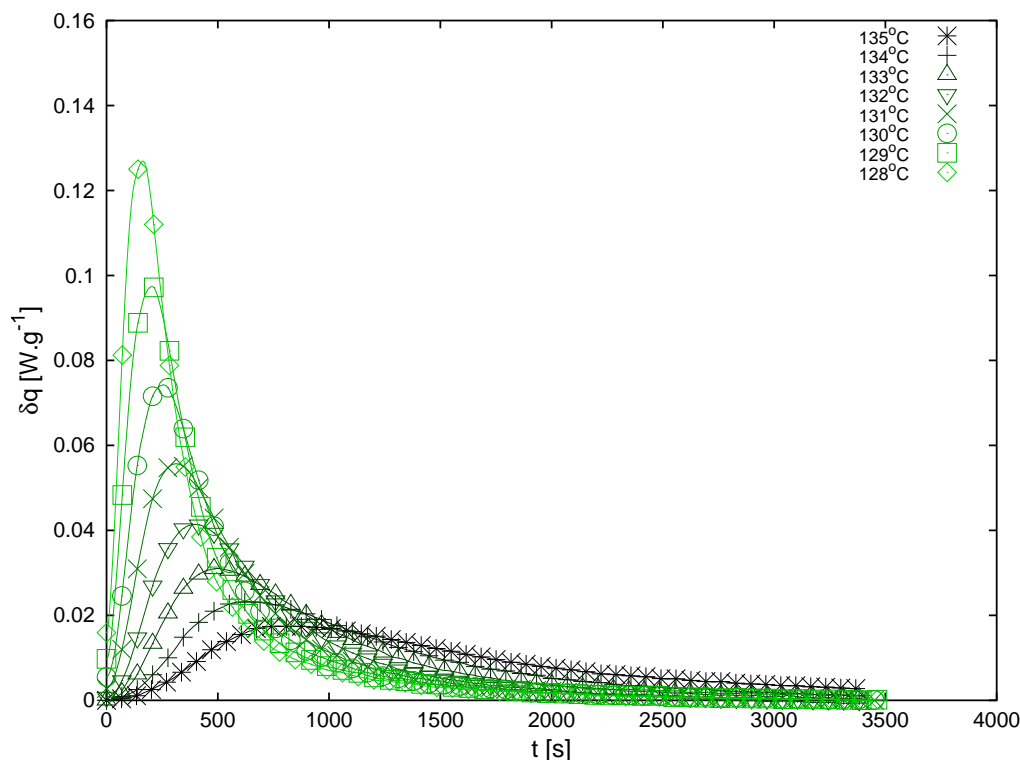


FIGURE 2.6 – Résultats DSC pour différentes températures de cristallisation - PPR3221

### 2.2.2 DSC isotherme à différentes températures de cristallisation

Dans cette deuxième étude, les échantillons sont chauffés à 200°C, puis refroidis à 70°C.min<sup>-1</sup> jusqu'aux différentes températures de cristallisation : de 135°C à 128°C pour les PPR10232 et PPR3221 et de 127°C à 120°C pour le MR10MX0. Une isotherme de 60 minutes est alors imposée pour chacune de ces températures.

La **figure 2.6** représentent les résultats des DSC pour les différentes températures de cristallisation concernant le PPR3221. Les résultats pour les deux autres polymères sont disponibles en **annexe B** via les **figure B.1 et B.2**.

Il apparaît, comme attendu, que plus la température de cristallisation est basse, plus le pic de cristallisation est étroit et élevé.

Les mesures de DSC de chaque cycle d'isotherme ont été ramenées à un temps initial  $t = 0$ s défini comme le temps à partir duquel le flux de chaleur a augmenté, signature de la cristallisation. L'intervalle de temps écoulé entre le début de chaque isotherme et le début de la cristallisation est appelé temps d'induction. Les temps d'induction pour chaque isotherme sont représentés **figure 2.7** pour les trois matériaux de l'étude.

Les temps d'induction pour la plage de températures utilisée pour les études cristallisations isothermes sont supérieurs à 50s. Le temps de cycle du procédé est de l'ordre de 16s, un temps bien trop court pour permettre à la cristallisation sous conditions isothermes de se produire aux températures considérées.

Les travaux de **Lorenzo et collab. (2007)**; **Sanchez et Eby (1973)**; **Mubarak et collab. (2001)**; **Li et collab. (2014)**; **Xiao et collab. (2003)**; **Papageorgiou et collab. (2013)**; **Supaphol et Spruiell (2000)** ont aidé à l'analyse

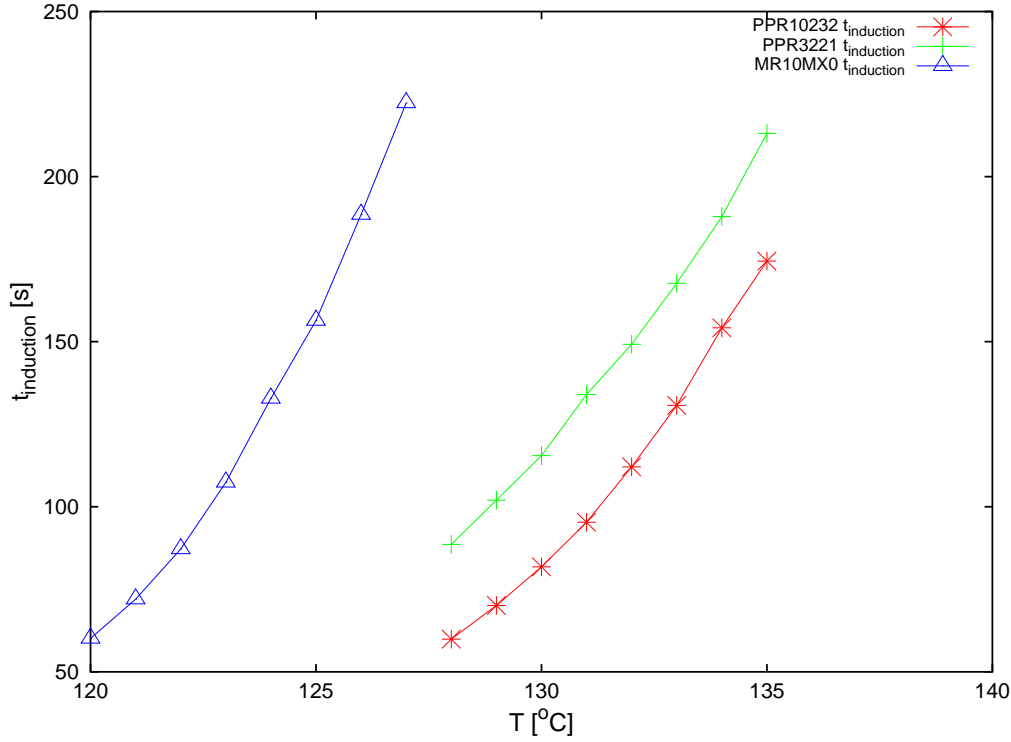


FIGURE 2.7 – Temps d'induction pour différentes températures de cristallisation sous condition isotherme - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

de ces données.

### 2.2.3 Étude de la cristallisation sous conditions isothermes

Afin de suivre l'évolution de la cristallisation, la fraction cristallisée  $\alpha$  est calculée et définie comme étant l'aire partielle sous le pic de cristallisation divisée par l'aire totale sous le pic. La **figure 2.8** représente l'évolution de  $\alpha$  au cours du temps pour le PPR3221. Les résultats pour les deux autres polymères sont disponibles en **annexe B (figures B.3 et B.4)**.

À partir de ces données, le temps de demi-cristallisation  $t_{\frac{1}{2}}$  est déduit, c'est le temps pour lequel  $\alpha$  vaut 0.5. Ces temps ont été reportés sur la **figure 2.9** concernant les trois polymères de l'étude.

L'inverse de ce temps de demi-cristallisation, ou temps demi-cristallisation réciproque, est souvent représenté car étant la signature de la cinétique de cristallisation. Ces valeurs sont reprises dans la **figure 2.10**.

Ces derniers résultats soulignent à nouveau que plus la température de cristallisation est élevée, plus la cristallisation sera lente.

Le modèle d'Avrami peut-être utilisé afin d'identifier l'évolution de la cristallinité relative au cours du temps :

$$\alpha(t) = 1 - e^{-kt^n} \quad (2.1)$$

avec  $k$  et  $n$  les paramètres du modèle. Ceux-ci sont déterminés en représentant  $\ln(-\ln(1-\alpha)) = f(\ln(t))$ . Le paramètre  $n$  est la pente de la droite suivant les points

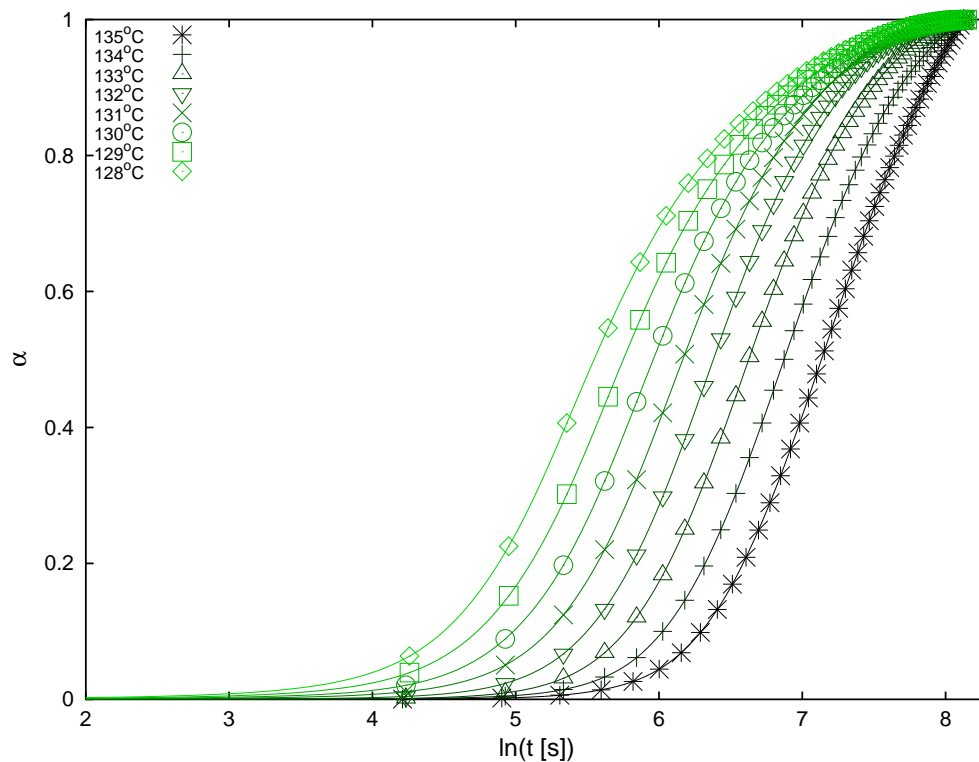


FIGURE 2.8 – Évolution de la fraction cristallisée au court du temps - PPR3221

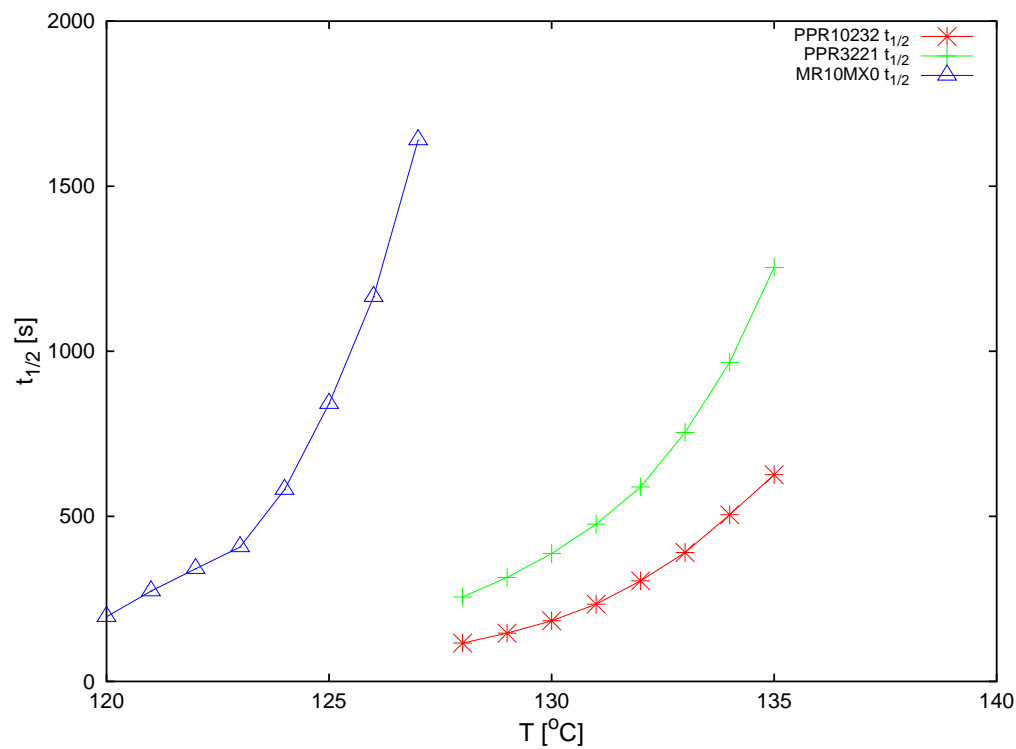


FIGURE 2.9 – Temps de demi-cristallisation pour différentes températures de cristallisation sous condition isotherme - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

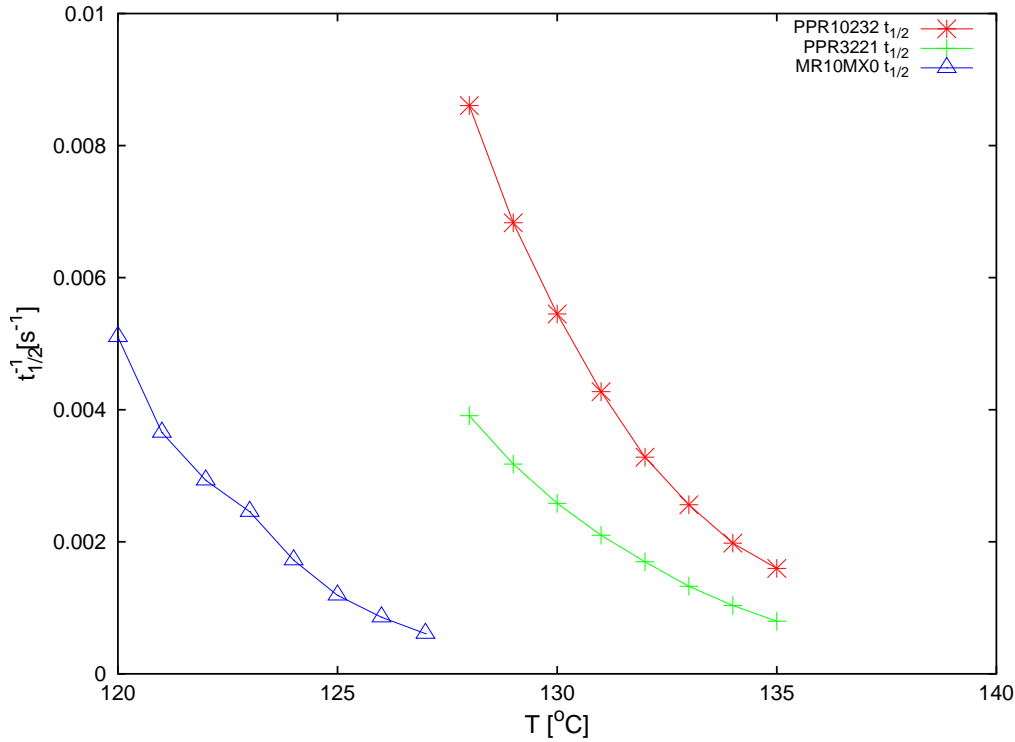


FIGURE 2.10 – Temps de demi-cristallisation réciproques pour différentes températures de cristallisation sous condition isotherme - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

ainsi représentés, et  $k$  est déduit de l'ordonnée à l'origine de cette droite.

L'intervalle de valeurs de  $\alpha$  sur lequel identifier le modèle dépend des données : les valeurs en début et fin de cristallisation pouvant s'éloigner du modèle. **Lorenzo et collab. (2007)** préconise d'identifier les paramètres du modèle d'Avrami sur l'intervalle [3%; 20%]. Il a ici été choisi de prendre le même intervalle. Seul le mécanisme de croissance primaire est donc identifié. Comme souligné par **Sarrabi et collab. (2013)**, les modèles globaux ne prennent pas en considération les cristallisations secondaires. C'est pourquoi ce dernier ne va pas au-delà de 60% de  $\alpha$ .

La **figure 2.11** illustre cette démarche pour le PPR3221. Les graphiques concernant les deux autres polymères (**figures B.5 et B.6**) sont disponibles en **annexe B**.

Les données recueillies présentent plus d'une pente. Cela pointe directement vers plusieurs mécanismes de cristallisation étant en compétition de sorte qu'un modèle d'Avrami simple n'est pas suffisant pour en rendre compte. Les matériaux étant des copolymères, avec des agents non-identifiés agissant sur la cristallisation pour limiter la croissance des structures cristallines afin d'assurer au produit final une bonne transparence, les hypothèses du modèle d'Avrami que sont **une nucléation instantanée** et **une croissance linéaire et constante** des sphérolites ne sont pas ici valides. L'allure des courbes, pour les trois matériaux, indique deux pentes, voir trois. Ceci indiquerait la présence de plus d'un régime de cristallisation.

Le **tableau 2.3** recense les valeurs des paramètres du modèle d'Avrami ainsi que les  $R^2$ , coefficients de détermination de la régression linéaire. Les **figures 2.12 et 2.13** représentent les paramètres  $n$  et  $\ln(k)$  en fonction de la température.

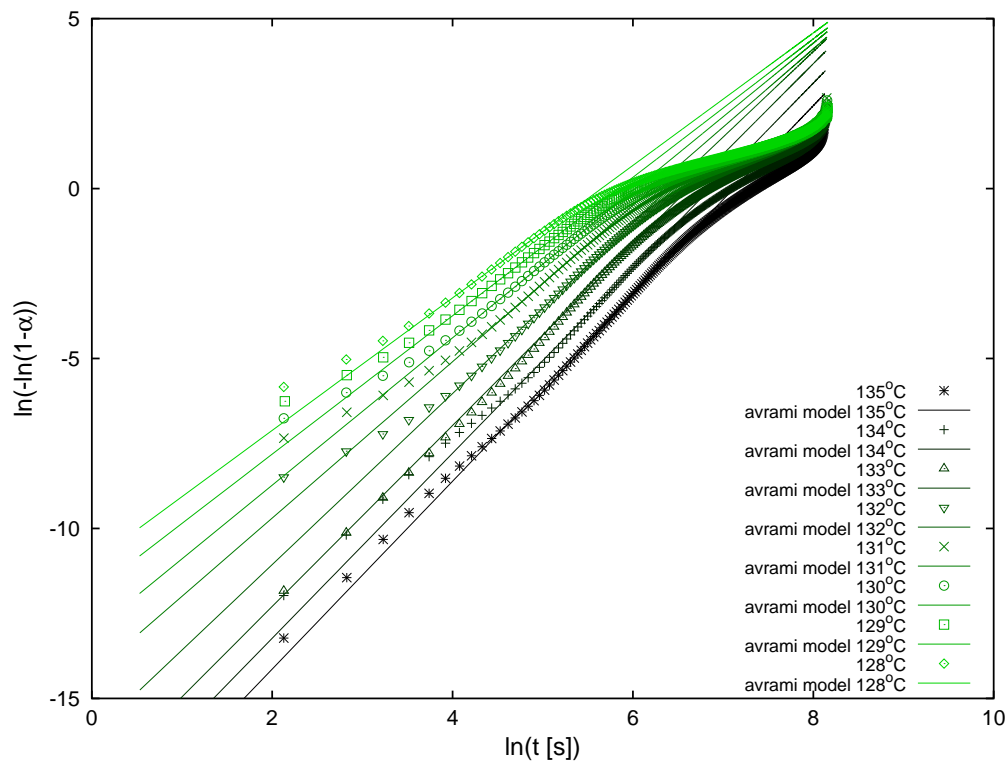


FIGURE 2.11 –  $\ln(-\ln(1-\alpha))$  versus  $\ln(t)$  pour différentes températures d'isotherme et régression linéaire sur l'intervalle la plus pertinente - PPR3221

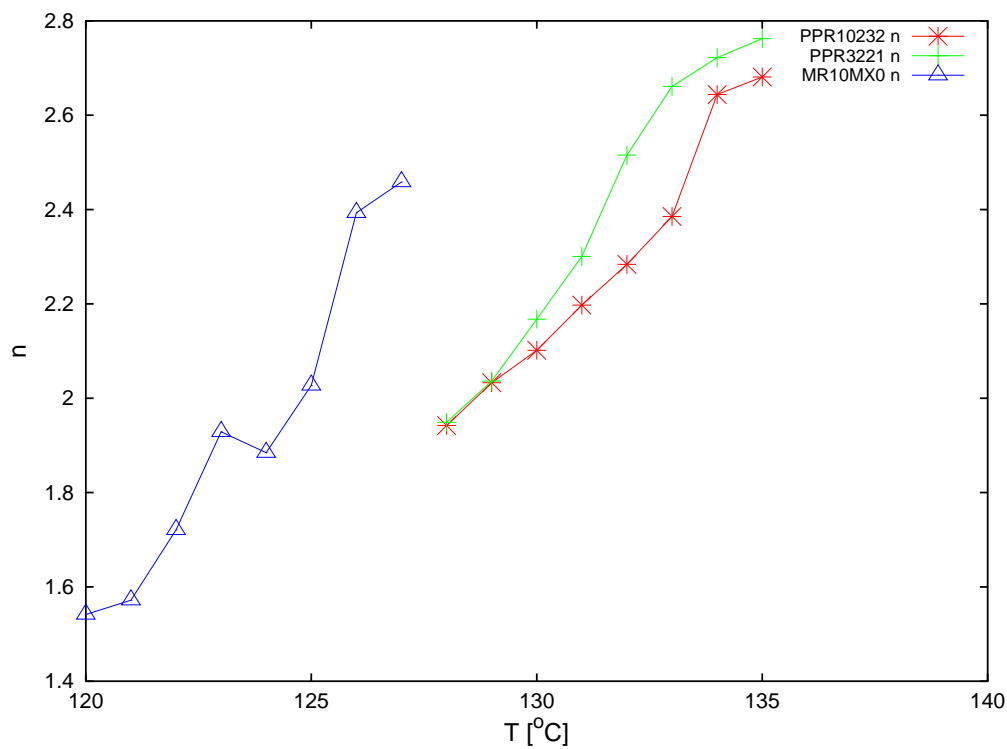


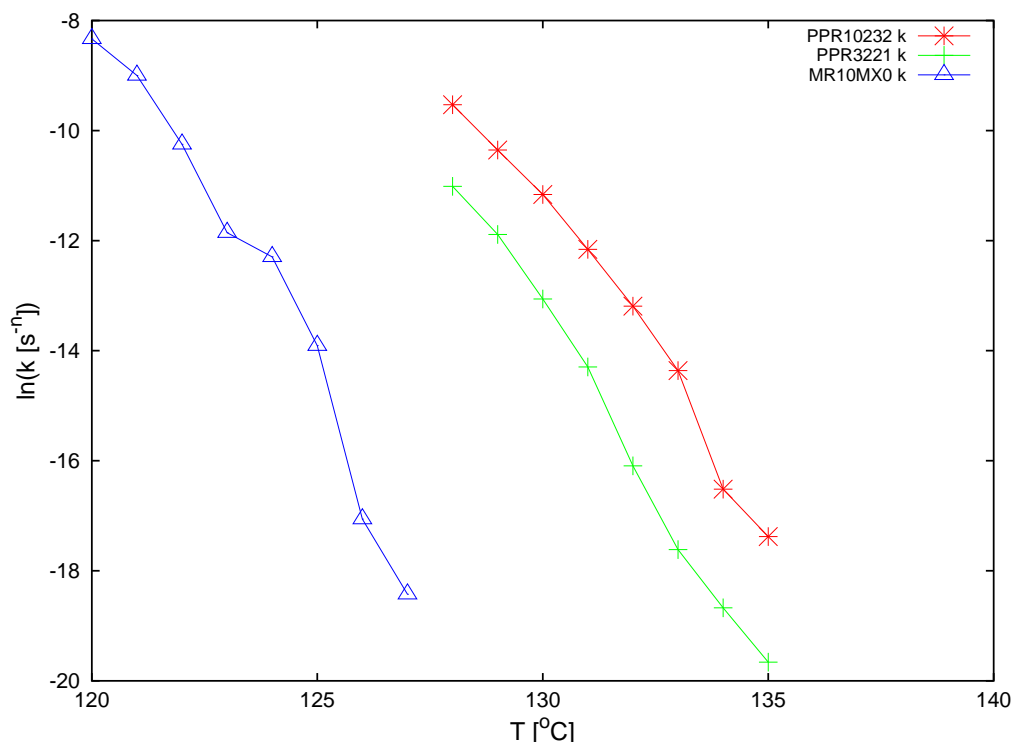
FIGURE 2.12 –  $n$  versus  $T$  pour les trois matériaux de l'étude

TABLE 2.3 – Paramètres de la loi d’Avrami déterminés sur la plage [3%-20%] :  
PPR10232

T [°C]							
135	134	133	132	131	130	129	128
$n$							
2.68	2.64	2.39	2.28	2.20	2.10	2.03	1.94
$\ln(k[s^{-n}])$							
-17.38	-16.52	-14.36	-13.19	-12.16	-11.16	-10.35	-9.531
$R^2$							
0.99984	0.99971	0.99991	0.99996	0.99994	0.99982	0.99969	0.99917
PPR3221							
T [°C]							
135	134	133	132	131	130	129	128
$n$							
2.76	2.72	2.66	2.52	2.30	2.17	2.04	1.95
$\ln(k[s^{-n}])$							
-19.66	-18.67	-17.62	-16.09	-14.30	-13.06	-11.89	-11.01
$R^2$							
0.99918	0.99913	0.99918	0.99949	0.99990	0.99990	0.99995	0.99984
MR10MX0							
T [°C]							
127	126	125	124	123	122	121	120
$n$							
2.46	2.39	2.03	1.88	1.93	1.72	1.57	1.54
$\ln(k[s^{-n}])$							
-18.43	-17.06	-13.91	-12.30	-11.86	-10.25	-9.000	-8.333
$R^2$							
0.99993	0.99988	0.99986	0.99970	0.99989	0.99993	0.99978	0.99959

Contrairement aux valeurs trouvées dans la littérature, notamment dans les travaux de **Monasse et Haudin (1986)** où le  $n$  varie de 3 à 2 sur une plage de température allant de 120°C à 130°C pour un PP isotactique, les valeurs de  $n$  augmentent avec la température. De plus, l’évolution de  $n$  avec la température ne présente pas de plateau, il n’y a donc pas de régimes distincts à identifier. Cela peut venir de la composition du polymère, les différents additifs dans la formulation venant probablement influencer sur la cristallisation. Ou bien encore la démarche d’identification du paramètre  $n$  : une pente est identifiée sur une plage fixée arbitrairement tandis qu’il apparaît clairement deux pentes selon la température de l’isotherme. Un modèle couplant deux mécanismes de cristallisation, soit deux lois d’Avrami, serait intéressant à étudier mais il faudra s’assurer de la légitimité d’une



FIGURE 2.13 –  $\ln(k)$  versus  $T$  pour les trois matériaux de l'étude

telle approche et de la pertinence des paramètres ainsi identifiés. Le risque d'utiliser un tel modèle serait d'avoir plusieurs jeux de paramètres pouvant satisfaire aux observations. Afin de confirmer les tendances observées et avant d'aller plus en avant dans l'identification des paramètres, il sera nécessaire de répéter les mesures DSC.

#### 2.2.4 DSC non-isotherme à différentes vitesses de refroidissement

Dans cette troisième étude, les échantillons sont chauffés à 200°C, puis refroidis à différentes vitesses : [1, 5, 10, 15, 30, 50, 60, 70]°C.min<sup>-1</sup>. Cette étude a pour but d'attester de l'effet de la vitesse de refroidissement sur la cristallisation. La matière partant du fondu dans le procédé, la question de la cristallisation ayant lieu pendant ou après le soufflage se pose et est capitale. L'aptitude à la mise en forme du PP repose-t-elle sur la viscosité de la phase amorphe ou bien sur l'existence de cristaux agissant comme des renforts ?

La **figure 2.14** représente les résultats des DSC pour différentes vitesses de refroidissement pour le PPR3221. Les résultats pour les deux autres matériaux de l'étude sont disponibles **figures B.7 et B.8** en **annexe B**.

Plus la vitesse de refroidissement est grande, plus la cristallisation intervient tard, donc à plus basse température. Les températures de début de pic et les températures où le pic est à son maximum ont été mesurées pour les trois matériaux de l'étude pour les différentes vitesses de refroidissement (voir **figure 2.15**).

L'effet de la vitesse de refroidissement semble tendre vers un plateau pour les hautes vitesses de refroidissement.

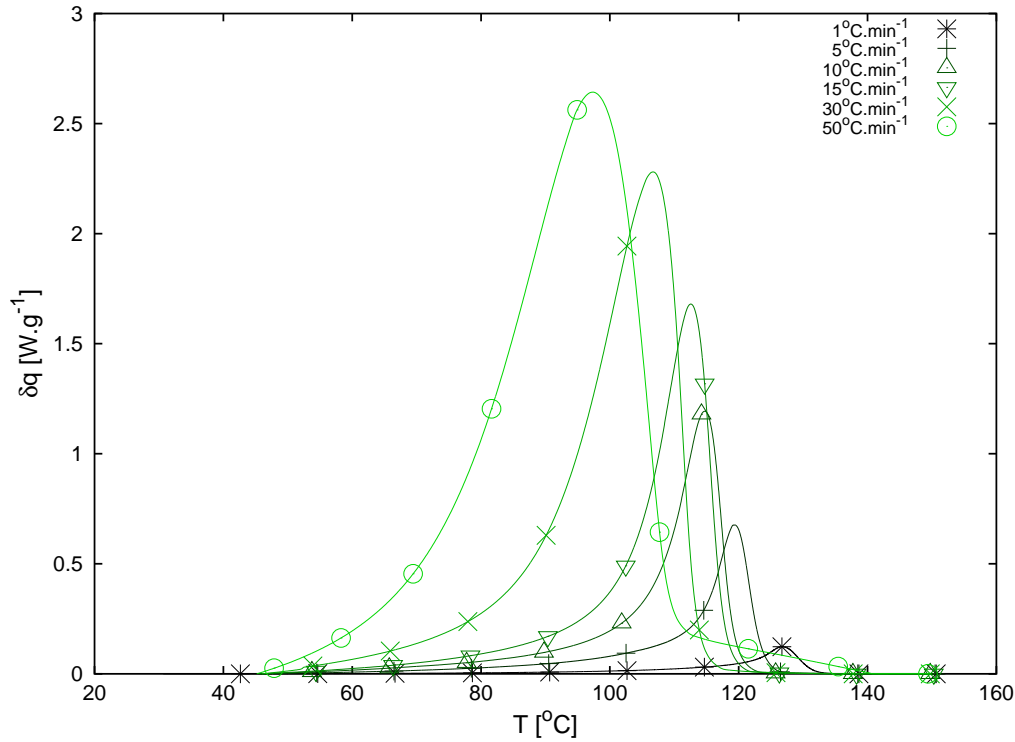


FIGURE 2.14 – Résultats DSC pour différentes vitesses de refroidissement - PPR3221

La différence entre la température de début de pic et la température de maximum du pic diminue pour les faibles vitesses de refroidissement (voir **figure 2.16**).

La différence entre température de début de pic et température de maximum du pic est plus grande pour les grandes vitesses de refroidissement. En divisant ces différences par la vitesse de refroidissement correspondante, le temps écoulé entre le début du pic et son maximum est déduit (voir **figure 2.17**).

Ce dernier graphique montre que plus la vitesse de refroidissement est faible, plus longtemps dure la cristallisation. Cette conclusion n'est pas la plus évidente en regardant uniquement les différences de température. La même tendance est observée pour les trois matériaux. Une loi puissance peut alors être identifiée :

$$t_{\text{écoulé}} = C\dot{T}^a \quad (2.2)$$

avec  $\dot{T}$  la vitesse de refroidissement,  $t_{\text{écoulé}}$  le temps écoulé entre le début de pic et le maximum du pic,  $C$  l'exponentielle de la valeur de l'ordonnée à l'origine de la courbe logarithmique et à la pente de la courbe logarithmique. Les valeurs des paramètres ainsi déterminés pour chaque matériau sont regroupées dans le **tableau 2.4**.

TABLE 2.4 – Valeurs des paramètres de la loi puissance :

Matériau	$C$ [ $^{\circ}\text{C}^a \cdot \text{s}^{a-1}$ ]	$a$
PPR10232	12.0	-0.687
PPR3221	9.57	-0.756
MR10MX0	13.8	-0.629

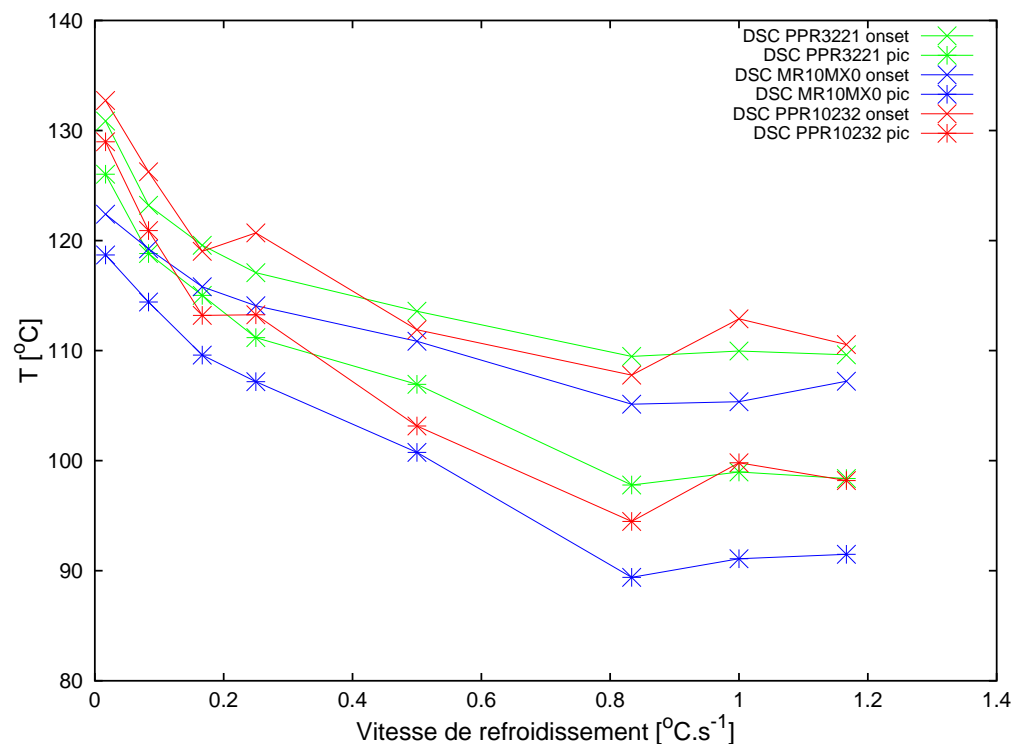


FIGURE 2.15 – Températures de début de pic et de maximum du pic pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

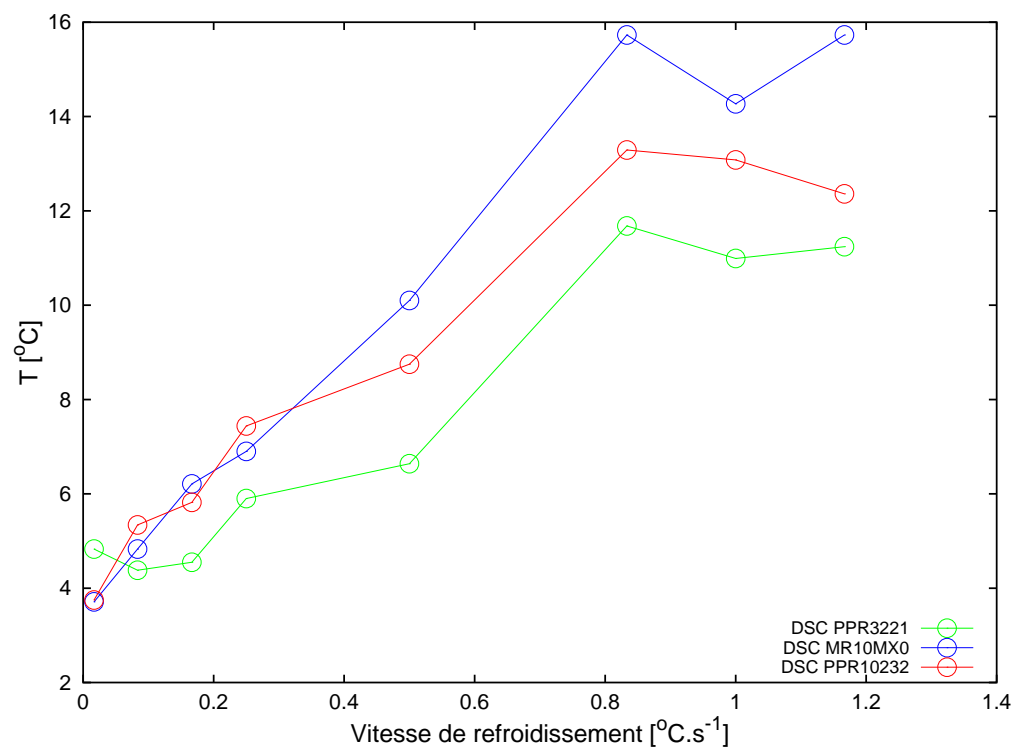


FIGURE 2.16 – Différence entre température de début de pic et température de maximum du pic pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

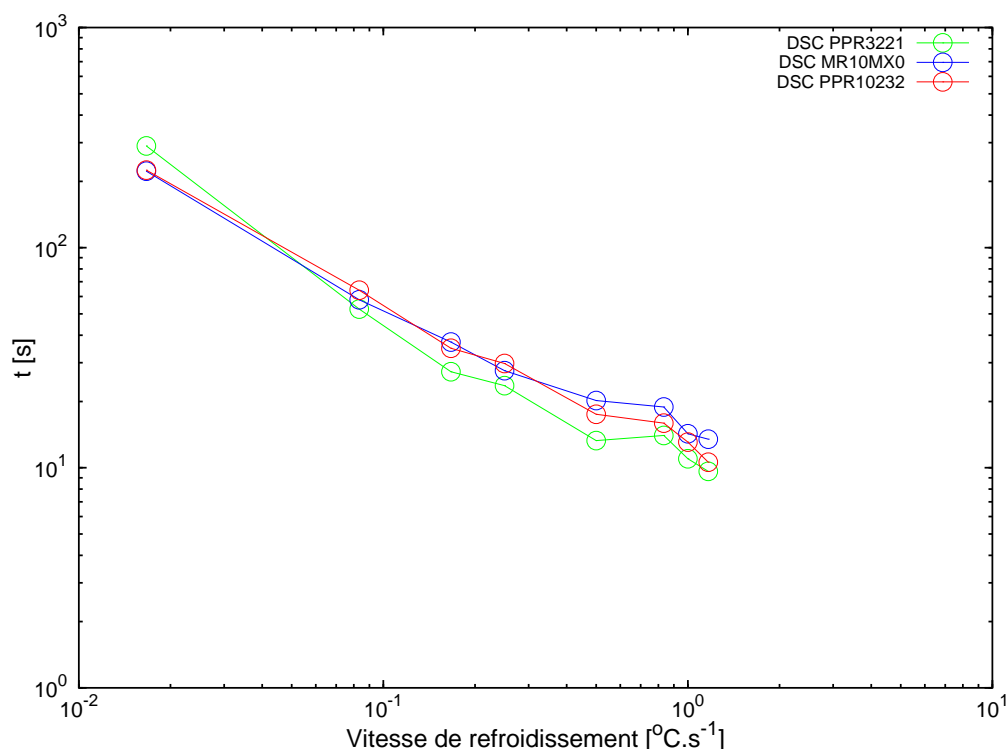


FIGURE 2.17 – Temps écoulé entre début de pic et maximum pour différentes vitesses de refroidissement - échelle logarithmique - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

### 2.2.5 Étude de la cristallisation à vitesse de refroidissement constante

La fraction cristallisée  $\alpha$  est calculée en faisant le rapport de l'aire partielle du pic sur l'aire totale du pic. Ce paramètre représente donc l'avancement de la cristallisation et est compris entre 0 et 1. La **figure 2.18** représente l'évolution de  $\alpha$  en fonction de la température pour différentes vitesses de refroidissement pour le PPR3221. Les **figures B.9 et B.10** concernant les deux autres matériaux sont disponibles en **annexe B**. La **figure 2.19** représente ce même  $\alpha$  mais fonction du temps pour le PPR3221 (voir en **annexe B** les **figures B.11 et B.12** pour les deux autres matériaux).

De même qu'en cristallisation isotherme, les temps de demi-cristallisation sont déduits et représentés **figure 2.20**.

Une loi puissance est identifiée (même démarche que **2.2**) et les coefficients de cette loi sont repris dans le **tableau 2.5**.

Les pentes obtenues sont assez proches de celles déterminées avec la précédente démarche (**2.4**), avec des écarts de 11%, 9% et 25% concernant les PPR10232, PPR3221 et MR10MX0 respectivement (les valeurs de références sont définies comme celles obtenus dans le **tableau 2.5**). Les coefficients  $C$  sont, quant à eux, bien différents, avec des rapports de 2, 1.4 et 2.4 respectivement. Les deux démarches ne sont pas substituables. Il aurait en effet été intéressant de ne se baser que sur

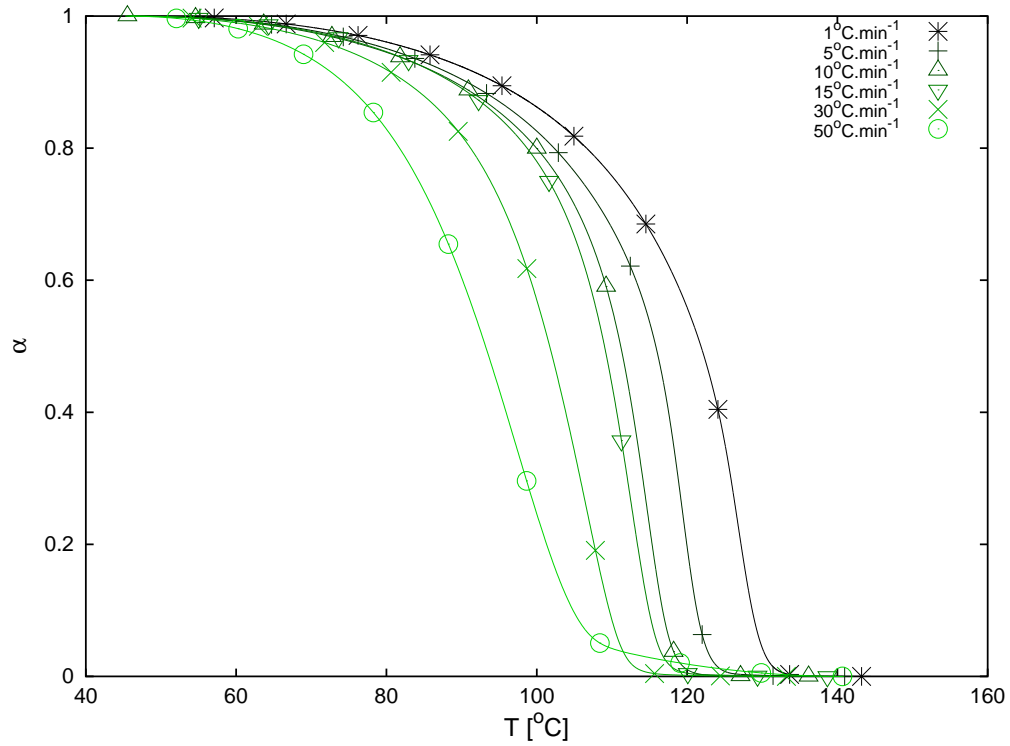


FIGURE 2.18 –  $\alpha$  fonction de la température pour différentes vitesses de refroidissement - PPR3221

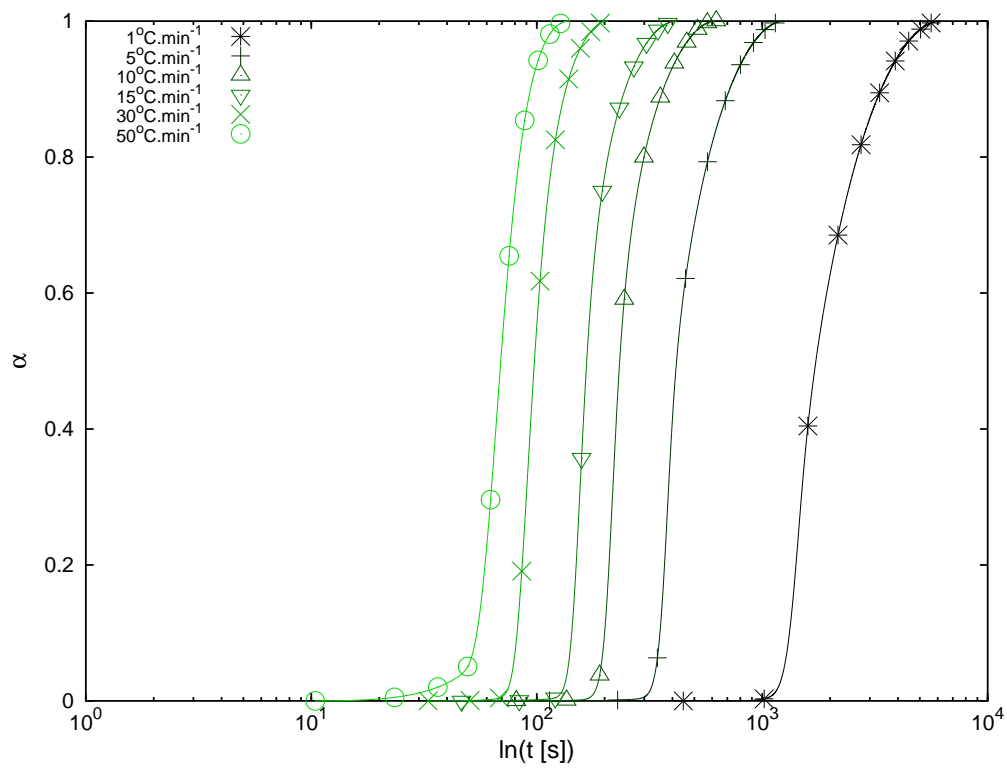


FIGURE 2.19 –  $\alpha$  fonction du temps pour différentes vitesses de refroidissement - PPR3221

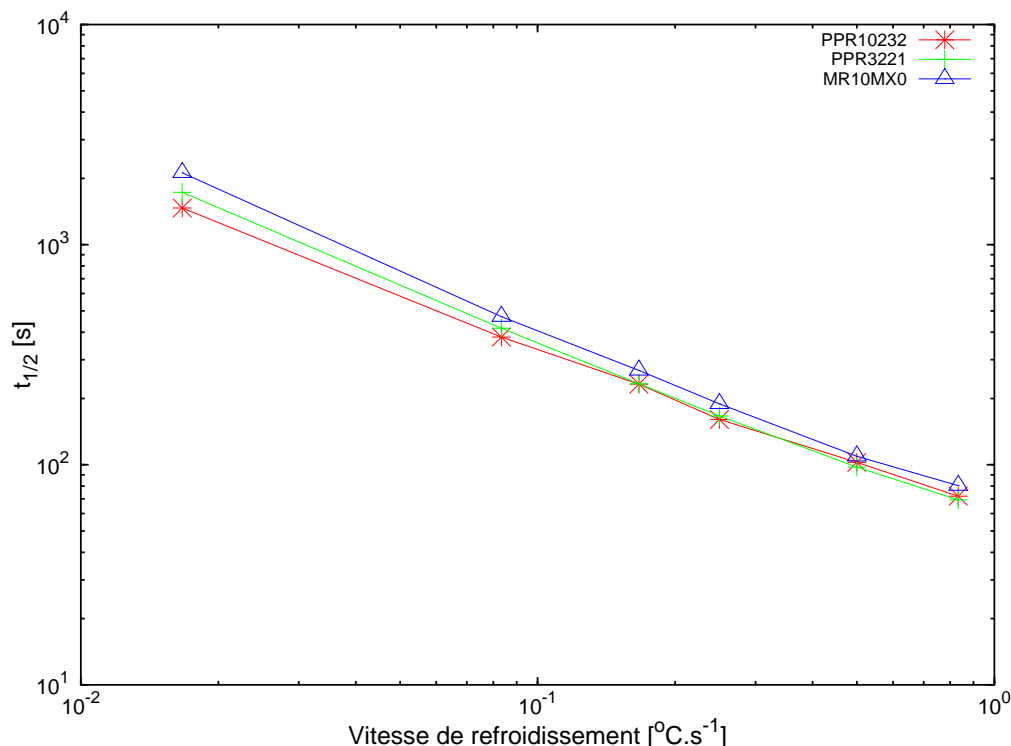


FIGURE 2.20 – Temps de demi-cristallisation pour différentes vitesses de refroidissement sous condition non-isotherme - échelle log-log - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

la connaissance des débuts et maximum des pics d'enthalpie afin de déterminer les temps de demi-cristallisation, mais cette démarche n'est pas assez précise.

De plus, une représentation de  $\alpha$  reprenant l'approche d'Avrami est possible, comme présenté par **Mubarak et collab. (2001)** (figure 2.21 concernant le PPR3221, voir **annexe B, figures B.13 et B.14** pour les deux autres polymères).

Ces derniers graphiques montrent, de même que pour les essais isothermes, plusieurs pentes. Les mécanismes de cristallisation de ces trois matériaux ne sont donc pas triviaux.

## 2.3 Comportement thermomécanique

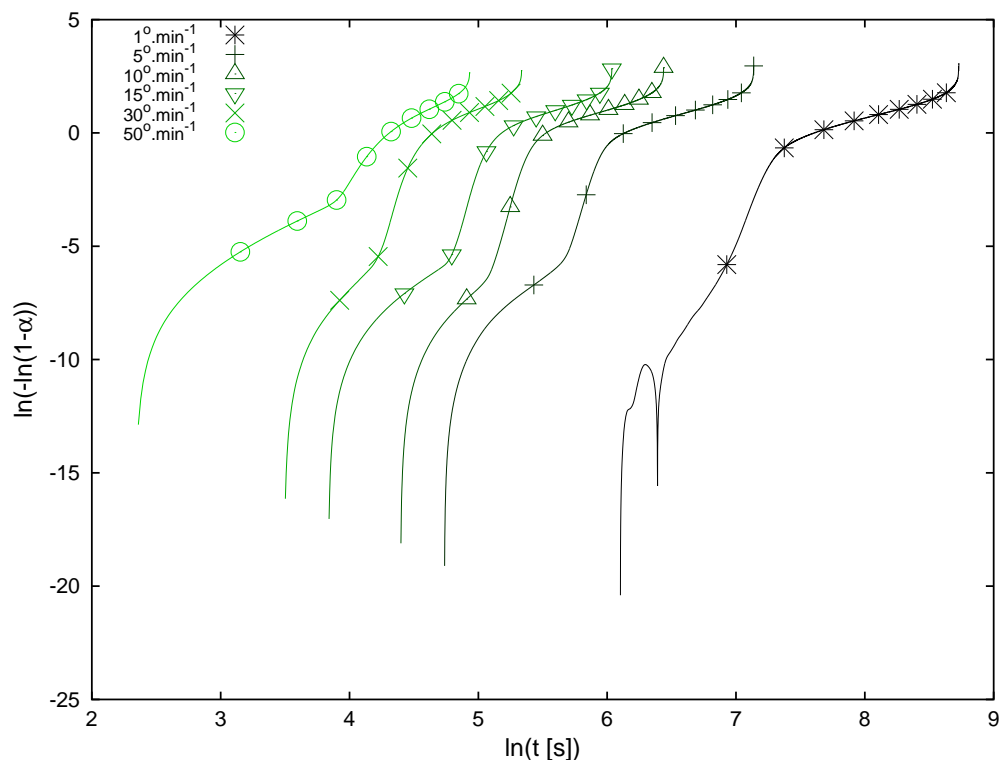
### 2.3.1 Étude bibliographique : Lois de comportement

La simulation numérique de la phase de soufflage du procédé IBM nécessite de choisir des lois de comportement en accord avec le type de polymère et le type de déformation auquel il est soumis. **Pham et collab. (2004)**, **Fatt et Ouyang (2008)**, **Yang et collab. (2000)**, **Wang et collab. (2000)**, et **Groot et collab. (2010)** ont simulé l'ISBM de pièces en PET en utilisant un modèle viscoplastique. **Vigny et collab. (1999)** identifient le comportement viscoplastique d'un PET amorphe étiré en contrainte plane. Afin de faciliter l'identification des paramètres

TABLE 2.5 – Valeurs des paramètres de la loi puissance :

Matériau	C [ $^{\circ}\text{C}^a \cdot \text{s}^{a-1}$ ]	a
PPR10232	4.077	-0.772
PPR3221	4.011	-0.828
MR10MX0	4.13	-0.844

de la loi choisie, une vitesse de déformation constante est imposée grâce à un asservissement du déplacement des mors. Le marquage sur l'éprouvette assure un suivi des déformations transverses (attendues négligeables) et des déformations dans la direction d'étirage. Des essais de DMA ont également été réalisés afin de vérifier l'influence de la vitesse de sollicitation sur la morphologie du PET amorphe. La cristallisation lors de l'essai est mesurée par DSC après avoir figé l'échantillon. Si le caractère amorphe est avéré, alors le durcissement sous déformation est supposé faible. Il apparaît que la cristallisation augmente avec la vitesse de sollicitation, et plus cette dernière est grande plus la cristallisation est précoce. Si un fort durcissement sous déformation est constaté, cela implique alors une modification du caractère amorphe du polymère. Les auteurs de ces travaux utilisent une loi reliant la cristallinité à la déformation et à la vitesse de déformation et le comportement du matériau est représenté via un modèle de réseau mis en parallèle avec un modèle viscoplastique. Le modèle viscoplastique est thermo-dépendant et représente en partie le durcissement sous déformation. Le modèle de réseau est sensible à l'orientation des chaînes macro-moléculaires. La configuration entropique est calculée à partir d'un assem-

FIGURE 2.21 –  $\ln(-\ln(1-\alpha))$  versus  $\ln(t)$  pour différentes vitesses de refroidissement - PPR3221

blage de ressorts de Langevin, dérivé d'une théorie statistique non-gaussienne d'un caoutchouc élastique. La distinction est faite entre les enchevêtrements et les cristallites, qui sont tous deux les nœuds du réseau considéré. C'est dans l'évolution du nombre de cristallites que s'exprime la dépendance de la cristallinité à la déformation et à la vitesse de déformation. Ces deux modèles en parallèles sont disposés en série avec un modèle élastique de type hookéen, représentant la réponse des liaisons de Van der Waals, qui est négligeable lors du chargement en partant d'un état amorphe mais qui devient non-négligeable lors de la décharge passé un certain niveau d'étirage.

Les travaux de **Ghafur et collab. (1994)** montrent que l'utilisation d'une loi viscoélastique type KBKZ est plus adaptée aux procédés de soufflage, d'étirage-soufflage, et de thermoformage qu'une loi hyperélastique. Lorsque la matière étirée atteint et colle au moule, la matière qui n'est pas encore en contact avec le moule est alors étirée plus avant, prise entre les zones où la matière est déjà en contact. C'est à ce moment que le comportement visqueux de la matière commence à prédominer.

Les résultats des simulations des présents travaux mettent d'ailleurs en évidence des zones où le cisaillement est présent, conjointement avec les sollicitation élongationnelles. Des zones où ce cisaillement est prépondérant et des zones où il est absent (la préforme est alors localement en soufflage libre) car la préforme n'est pas en contact avec le moule à proximité.

**Schmidt et collab. (1996)** utilisent aussi une loi viscoélastique et étudient la sensibilité au temps de relaxation dans le cas du soufflage d'un tube avec glissement plan-plan aux extrémités du tube. Quand le temps de relaxation augmente, l'épaisseur du tube décroît plus rapidement et l'augmentation initiale de la force d'étirage (force exercée sur les plans aux extrémités du tube) diminue. Ils comparent alors la force d'étirage en fonction du temps pour deux modèles viscoélastiques (Maxwell convecté supérieur et Oldroyd B) et pour un fluide Newtonien. Cette première étude montre l'incapacité d'un modèle purement visqueux à prendre en compte l'augmentation initiale de la force d'étirage, qui est bien prise en compte par les deux modèles viscoélastiques. Le modèle numérique est ensuite utilisé pour simuler la mise en forme de bouteille en PET par ISBM sous hypothèse isotherme. Les paramètres de la loi de comportement ont été déterminés à l'aide d'essais de traction sur des éprouvettes en PET amorphe, injectées sous les mêmes conditions que la préforme. Et déjà la difficulté d'identifier le comportement thermomécanique sous conditions de mise en forme est soulevée, car le PET, sous haute vitesse de déformation et en prenant en compte l'évolution de la température, voit sa morphologie évoluer ce qui implique de prendre en compte cette évolution structurale dans la loi de comportement. Quelques années plus tard, l'évolution de la température est prise en compte (**Schmidt et collab. (1998)**). Les épaisseurs demeurent proches des mesures expérimentales et des épaisseurs simulées sous hypothèse isotherme.

Des modèles viscoélastiques sont disponibles sous POLYFLOW et sont présentés comme suit (**ANSYS (2010)**). Le tenseur des extra-contraintes  $\tilde{T}$  (ou  $\tilde{S}$ ) se décompose en une contribution viscoélastique  $\tilde{T}_1$  et une contribution purement visqueuse  $\tilde{T}_2$ .

$$\tilde{T}_2 = 2\eta_2 \tilde{D} \quad (2.3)$$

avec  $\tilde{D}$  le tenseur des vitesses de déformation et  $\eta_2$  la viscosité Newtonienne

Le tenseur des extra-contraintes viscoélastique peut être exprimé suivant le modèle de KBKZ :



$$\tilde{T}_1 = \frac{1}{1-\theta} \int_0^\infty \sum_{i=1}^N \frac{G_i}{\lambda_i} e^{-\frac{s}{\lambda_i}} H(I_1, I_2) \left[ \tilde{C}_t^{-1}(t-s) + \theta \tilde{C}_t(t-s) \right] ds \quad (2.4)$$

avec  $N$  nombre de modes de relaxation,  $i$  le mode de relaxation,  $G_i$  les modules de relaxation,  $\lambda_i$  les temps de relaxations,  $\theta$  le paramètre contrôlant le ratio des différences des contraintes normales  $\frac{N_2}{N_1} = \frac{\theta}{1-\theta}$ ,  $H$  une fonction d'amortissement,  $\tilde{C}$  le tenseur des déformations de Cauchy-Green,  $I_1$  et  $I_2$  les premiers invariants du tenseur  $\tilde{C}$ . Le cas le plus simple est le modèle de Lodge-Maxwell, où il n'y a pas d'amortissement :  $H = 1$  et  $\theta = 0$ . Le modèle de Papanastasiou-Scriven-Macosko (PSM) définit le terme d'amortissement  $H$  comme suit :  $H = \frac{\alpha}{\alpha + I - 3}$  avec  $\alpha$  le paramètre associé au comportement sous cisaillement. Le modèle de Wagner définit quant à lui le terme d'amortissement suivant :  $H = e^{-n(I-3)^{\frac{1}{2}}}$ , avec  $n$  gouvernant la viscosité en cisaillement et le comportement élongationnel. Dans ces deux derniers modèles,  $I$  est fonction des deux premiers invariants du tenseur de Cauchy-Green :  $I = \beta I_1 + (1 - \beta) I_2$ , avec  $\beta$  influençant le comportement élongationnel. Deux types d'approches sont à discerner : les modèles réversibles, avec la fonction d'amortissement  $H$  pouvant croître et décroître ; et les modèles irréversibles avec, à l'inverse, une fonction  $H$  ne pouvant que décroître.

Ces modèles offrent une bonne prédiction de la répartition d'épaisseurs finale mais seul le modèle de **Wang et collab. (2000)** est à même de prédire l'historique des déformations. Quoi qu'il en soit ces modèles sont des modèles phénoménologiques, et donc limités aux conditions expérimentales dans lesquels ils ont été étudiés. Mais il est difficile d'établir un protocole expérimental correspondant aux conditions du procédé, les températures, cinétiques thermiques, déformations et vitesses de déformations rencontrés dans le procédé ne peuvent être reproduits en laboratoire. C'est pourquoi le modèle de Buckley est préféré par **Yang et collab. (2004b)**. Le principe de ce modèle est de considérer l'énergie libre associée à la déformation amorphe du matériau comme la somme de deux contributions distinctes : l'étirage des liaisons des structures moléculaires et changements de conformation du réseau macromoléculaire. La première est elle-même la combinaison d'élasticité linéaire, donc déformation réversible, et d'une déformation plastique irréversible représentés par un modèle d'Eyring. La dernière est bien représentée par la théorie hyperélastique d'Edwards-Vilgis. Ce modèle offre une bonne prédiction des épaisseurs finales et de l'historique de déformation. Ce modèle continue d'évoluer (**Buckley et Jones (1995, 1996)**; **Adams et collab. (2000)**; **Focatiis et collab. (2010)**; **Buckley et Lew (2011)**) et de prendre en compte des phénomènes dès que la mesure de ces phénomènes est possible.

Selon les matériaux et les plages de températures et de sollicitation impliquées dans le procédé, notamment lorsque le polymère est initialement amorphe puis est refroidi et étiré durant la phase d'étirage dans le cadre du procédé conventionnel ISBM, une loi hyperélastique peut s'avérer plus pertinente afin de modéliser le comportement du matériau et modéliser le phénomène de striction (**Sweeney et Ward (1995b,a)**). **Sweeney et Ward (1996)** proposent un modèle de Ball et al. modifié. Dans ce nouveau modèle développé pour modéliser le comportement de polymères aux grandes déformations et aux hautes températures, l'un des paramètres définissant le réseau des chaînes macromoléculaire supposé constant est alors défini comme décroissant avec la sollicitation qui augmente. Ce paramètre correspond au nombre d'interactions faibles entre chaînes macromoléculaires voisines (nombre de

zone de glissement de chaînes). Le modèle ainsi modifié est intégré dans ABAQUS afin de simuler l'étirage uni-axial d'une éprouvette afin de simuler le phénomène de striction. Ce modèle est repris ensuite et appliqué à la comparaison d'essais de traction uni-axial et des essais d'extensométrie plane de PP aléatoire (**Sweeney et collab. (1997)**). Il apparaît que les paramètres déterminés à partir des essais d'étirage uni-axial ne permettent pas de correctement simuler les résultats des essais multi-axiaux. Toutefois, les niveaux de contraintes et d'effort sont proches de la réalité avec l'utilisation du modèle hyperélastique, bien que le matériau soit viscoélastique. Ce modèle est ensuite appliqué à l'étude du comportement d'éprouvettes orientés (**Sweeney et collab. (2002)**) ou bien à la représentation de striction et du gauçhissement sous cisaillement appliqué aux polymères amorphes et semi-cristallins (**Sweeney et collab. (2007)**).

Une loi hyper-élastique de type Mooney-Rivlin est utilisée dans les travaux de thèse de **Champin (2007)**, portant sur la modélisation du chauffage par Infra-Rouge et du soufflage de corps creux en PET, de même qu'une loi viscoplastique de type G'Sell. Une comparaison entre loi hyperélastique et loi viscoplastique est réalisée. Une loi hyperélastique présente les avantages d'être largement renseignée dans la littérature et est à même de modéliser le retour élastique de la matière. Elle est cependant difficile à implémenter dans un logiciel de calcul, présente des instabilités, ne prend pas en compte la dépendance temporelle, ni l'effet de la vitesse de déformation, ni celui de la température en dehors des paramètres identifiés. Une loi viscoplastique est quant à elle simple à implémenter dans un logiciel de calcul, prend en compte la dépendance temporelle et peut prendre en charge l'anisotropie de la matière. Toutefois, le durcissement structural est difficile à identifier en accord avec la réalité, le retour élastique n'est pas pris en compte et la prévision des contraintes finales est alors impossible. Il est souligné que des paramètres identifiés à partir d'essais uni-axiaux négligent de fait les effets bi-axiaux et engendrent une surestimation des contraintes pour un état de déformation donné.

Afin de garder la porte ouverte à l'utilisation de ces lois, un montage d'extensométrie par corrélation d'image a été développé. Un système d'enceintes thermiques a également été conçu afin de permettre l'identification des paramètres de ces lois à différentes températures. Le détail de ces développements est disponible au **chapitre 5**.

En prévision de l'exploitation de ce système d'extensométrie avec enceinte chauffante, la lecture des travaux de **Dahoun (1992)** est riche en enseignements, que ce soit au niveau des protocoles expérimentaux, du traitement des données et de l'interprétation qui en est faite. Les discussions autour des déformations plastiques et l'analogie faite avec la formation de ces déformations chez les métaux permet de saisir la complexité de ce phénomène chez les matériaux polymères. Les travaux de **Haynes et Coates (1996)**; **Kontou et Farasoglou (1998)** traitent également de mesures locales des déplacements lors d'essais de traction uni-axiale, ont servi de comparatif pour les résultats préliminaires obtenus lors du développement des mesures par extensométrie. Le phénomène de striction a en effet été observé sur des éprouvettes en PPR3221 étirées à température ambiante et les courbes de déformations obtenues présentent les mêmes tendances que celles présentées dans cet article.

Dans le cas de la mise en forme d'un polymère fondu, **Bellet et collab. (2002)** explique que l'utilisation d'une loi Newtonienne généralisée ou d'une loi viscoélastique

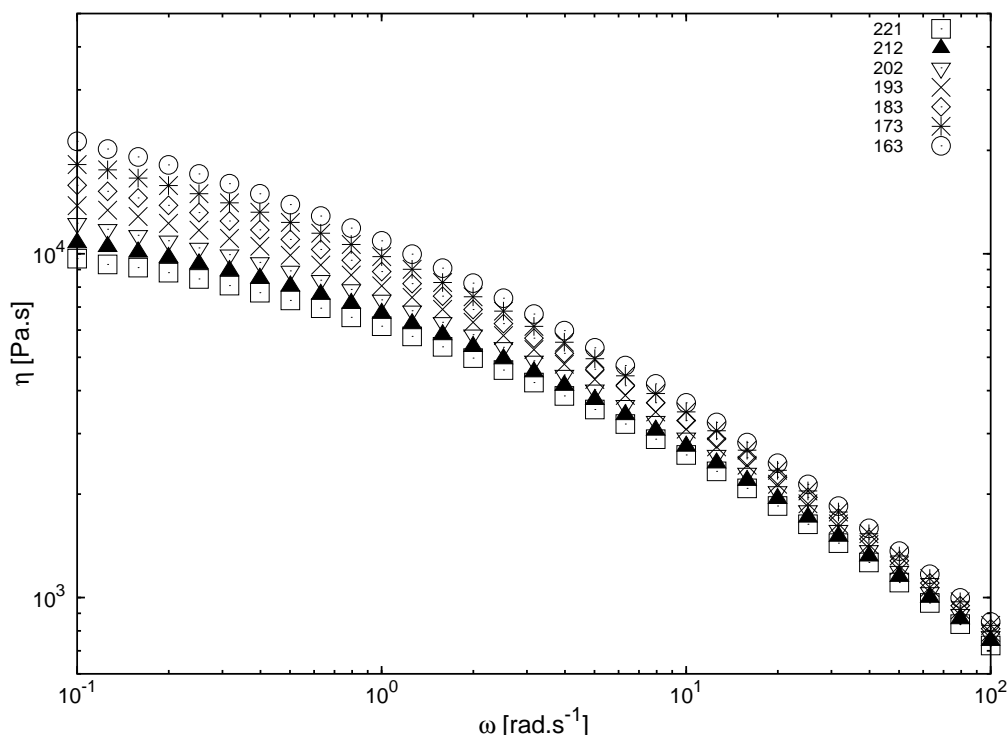


FIGURE 2.22 – Courbes de viscosité obtenues à différentes températures par balayage en fréquences - PPR3221

est légitime, comme cela peut-être le cas dans le procédé d’extrusion-soufflage. Il est supposé, et cela sera avéré par la suite, que le polymère reste à l’état fondu lors de sa mise en forme dans le cas du procédé IBMSS. C’est pourquoi le comportement des PP de cette étude est représenté par un modèle de Cross, la matière étant soufflée dans son état amorphe. Afin d’identifier les paramètres de ce modèle, des essais en rhéométrie dynamique sont réalisés.

### 2.3.2 Rhéométrie dynamique

Le comportement rhéologique des matériaux est étudié sous cisaillement à l’état fondu, avec plateaux parallèles oscillants, sur une RDA II Bendinx Spring 2000. Des balayages en fréquence sont réalisés à différentes températures. La viscosité est ensuite déduite et l’effet du cisaillement et de la température sont identifiés, comme illustré dans la **figure 2.22**. Les **figures C.1 et C.2** disponibles en **annexe C** correspondent aux résultats pour les PPR10232 et MR10MX0.

### 2.3.3 Modèle de Cross et loi d’Arrhénius

La température de référence est déterminée comme la moyenne des températures d’essais. Les facteurs de glissement  $a_T$ , permettant l’équivalence temps/température, sont déterminés et la courbe maîtresse peut être obtenue, comme illustré **figure 2.23** (voir **annexe C figures C.3 et C.4** pour les deux autres matériaux de l’étude).

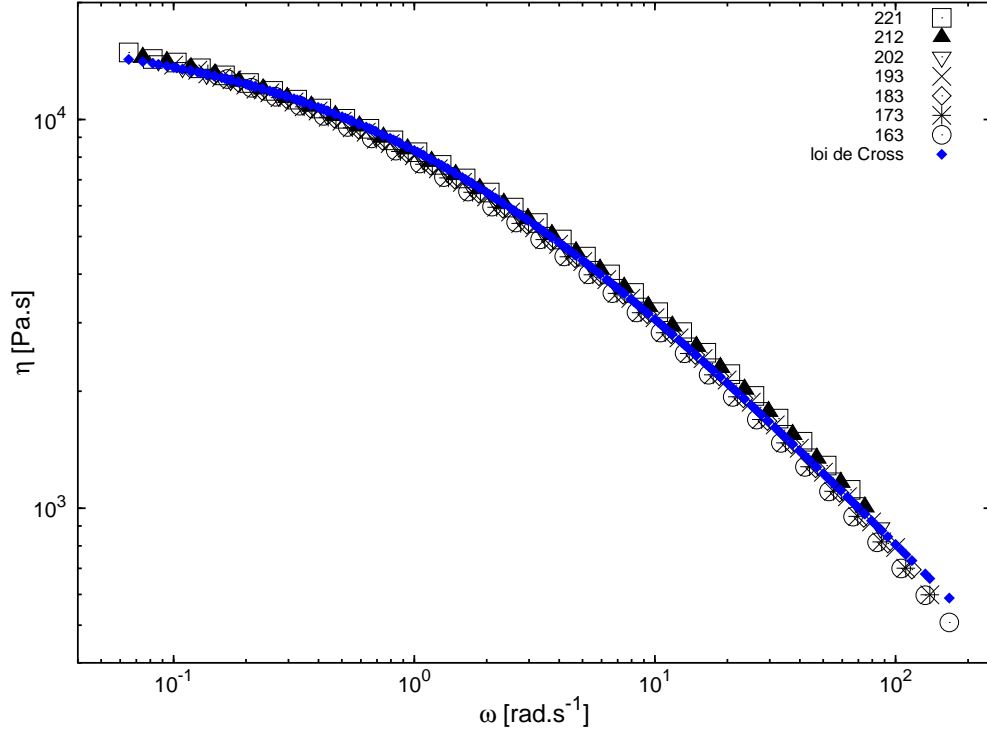


FIGURE 2.23 – Courbe maîtresse et la loi de Cross identifiée - PPR3221

À partir de ces courbes maîtresses, l'effet de rhéofluidification est étudié et une loi rhéofluidifiante est identifiée. La dépendance en température est déduite de la courbe  $\log(a_T) = f(\frac{1}{T})$  présentée dans la **figure 2.24** (voir **annexe C figures C.5 et C.6** pour les deux autres matériaux de l'étude).

Le modèle de Cross est utilisé pour représenter le comportement rhéofluidifiant du matériau :

$$\eta = \frac{a_T \eta_0}{1 + (a_T \lambda \dot{\gamma})^{1-n}} \quad (2.5)$$

avec  $\eta_0$  la viscosité à cisaillement nul,  $\lambda$  le temps de relaxation et  $n$  l'indice de rhéofluidification.

L'effet de la température est pris en compte à travers la loi d'Arrhénius :

$$a_T = e^{\frac{E_a}{R}(\frac{1}{T} - \frac{1}{T_{\text{ref}}})} \quad (2.6)$$

avec  $R$  la constante des gaz parfaits,  $E_a$  l'énergie d'activation du matériau et  $T_{\text{ref}}$  la température de référence.

Les valeurs des paramètres utilisés pour modéliser le comportement du PPR3221 sont présentées dans le **tableau 2.6**. **Koscher et Fulchiron (2002)** ont travaillé sur un PP commercial fourni par Solvay et ont trouvé une énergie d'activation  $E_a = 45\,080 \text{ J.mol}^{-1}$ . Les énergies d'activation des copolymères PP de cette étude sont du même ordre de grandeur. Les écarts pouvant s'expliquer par le fait que

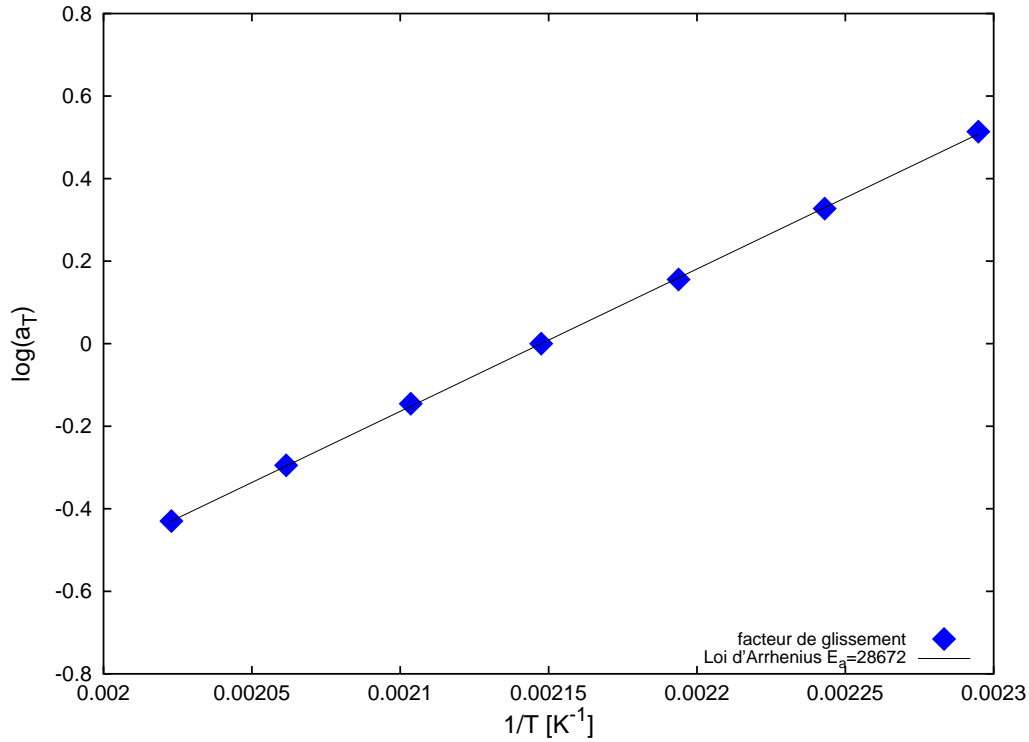


FIGURE 2.24 – Facteurs de glissement et la loi d’Arrhénus identifiée - PPR3221

les PP considérés ici sont des copolymères d’éthylène, dont la présence au sein des chaînes macromoléculaire impacterait l’énergie d’activation.

TABLE 2.6 – Paramètre de modélisation du comportement des polymères de l’étude - modèle de Cross-Arrhénus :

	$\eta_0$ [Pa.s]	$\lambda$ [s]	n	$E_a$ [J.mol <sup>-1</sup> ]	$T_{ref}$ [°C]
PPR10232	$6.87 \cdot 10^2$	$3.50 \cdot 10^{-2}$	0.38	32 546	191.53
PPR3221	$1.68 \cdot 10^4$	$1.02 \cdot 10^0$	0.35	28 670	192.50
MR10MX0	$2.28 \cdot 10^3$	$3.86 \cdot 10^{-2}$	0.30	33 120	191.49

La **figure 2.25** regroupe les courbes maîtresses des trois polymères de l’étude. La **figure 2.26** regroupe les facteurs de glissements des trois matériaux.

### 2.3.4 Comportement viscoélastique

Le comportement viscoélastique à l’état fondu peut être étudié selon différentes approches, comme expliqué dans les travaux de **Carrot et Guillet (1999)**. Il a ici été choisi d’étudier les spectres de relaxation et les diagrammes Cole-Cole des polymères des présents travaux de thèse.

À partir des  $G'$  et  $G''$ , les spectres de relaxation des matériaux de l’étude peuvent être déduits. Ces spectres de relaxation sont utilisés pour modéliser le comportement du matériau via un modèle viscoélastique, au lieu du modèle de Cross. La dépendance thermique est toujours assumée par la même loi d’Arrhénus. **Carrot et collab.**

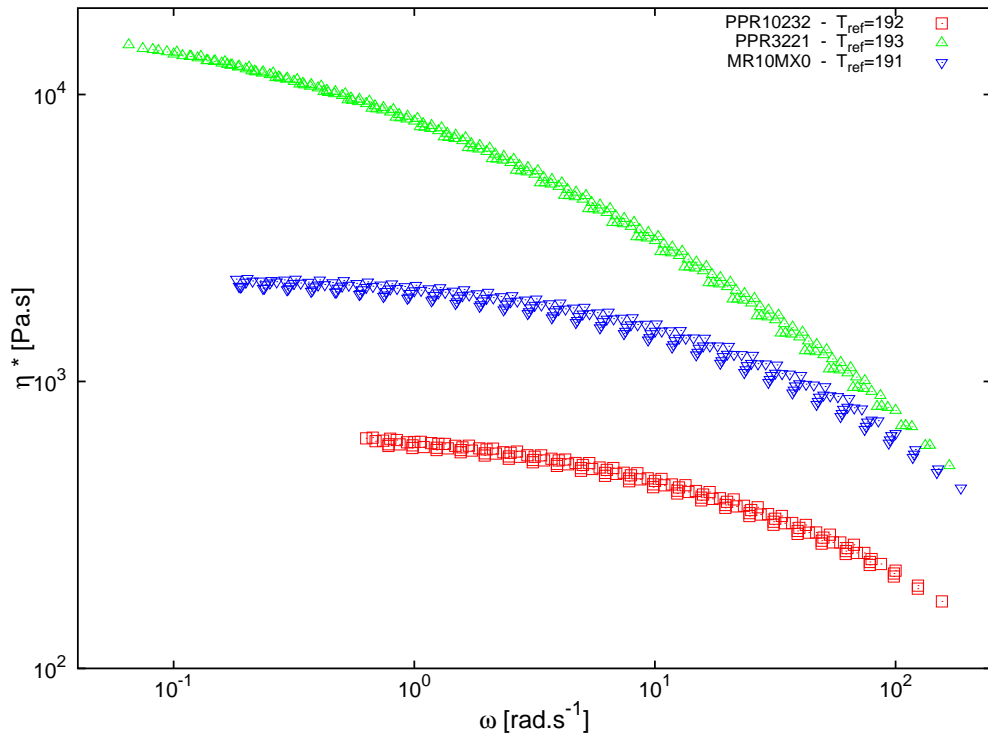


FIGURE 2.25 – Courbes maîtresses - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

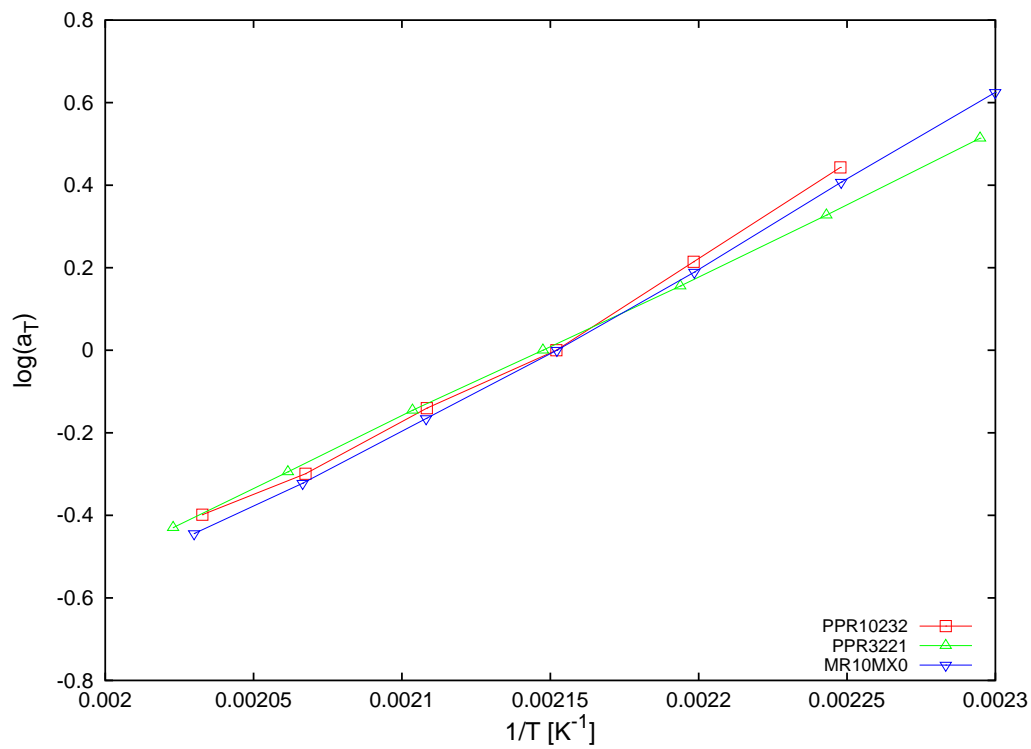


FIGURE 2.26 – Facteurs de glissement - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

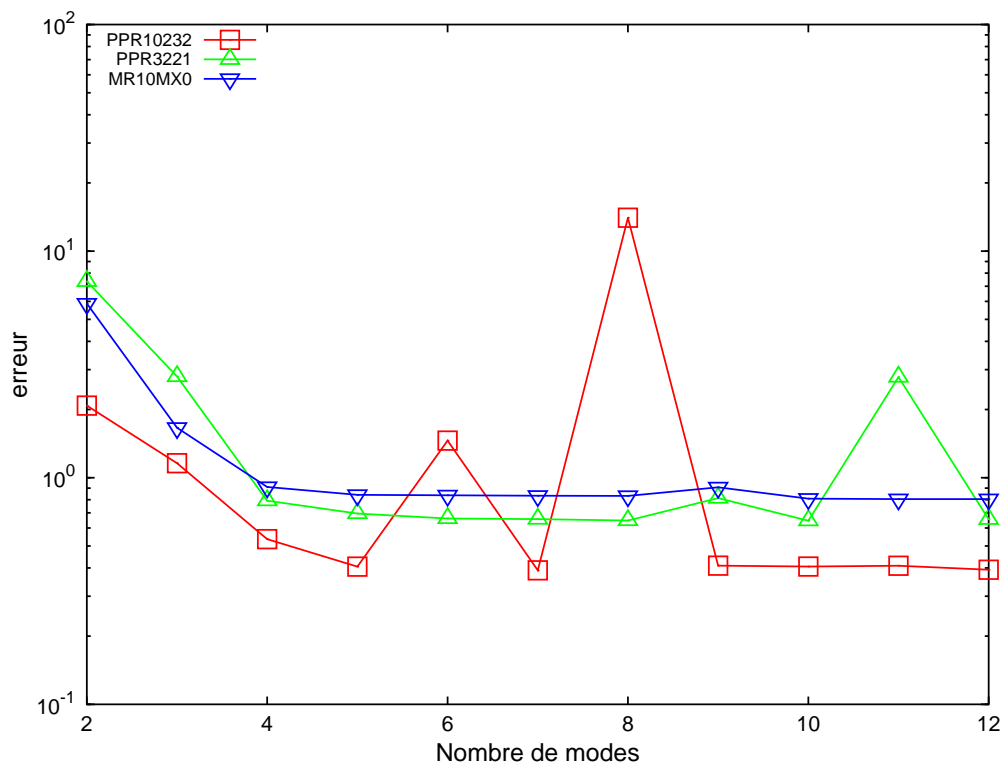


FIGURE 2.27 – Erreur entre valeurs expérimentales et valeurs du modèle en fonction du nombre de modes - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

(1992) ont montré que la détermination du nombre de modes dans le spectre de relaxation est un problème mal posé. Plusieurs jeux de paramètres peuvent résoudre le problème posé. La méthode utilisée ici consiste à déterminer des spectres de relaxations dont le nombre de modes varie de deux à douze. Un premier filtre consiste à ne considérer que les spectres dont les valeurs sont cohérentes : les valeurs négatives ne sont pas tolérées. L'erreur entre les modules expérimentaux et les valeurs du modèle est ensuite étudiée en fonction du nombre de modes (**figure 2.27**). Lorsque l'erreur ne diminue plus significativement, l'ajout de modes de relaxation n'est plus pertinent.

D'après le premier filtre seul un spectre de relaxation à deux modes fournis des valeurs réelles pour le PPR10232. Concernant le PPR3221, des spectres à deux, quatre, cinq et six modes satisfont au premier filtre. Il en va de même pour le MR10MX0 qui possède en plus un spectre à sept modes valable.

Au vu de la **figure 2.27**, l'erreur ne varie presque pas au-delà de quatre modes pour le PPR3221 et le MR10MX0. C'est donc ce nombre de modes qui est retenu pour les spectres de relaxation de ces deux matériaux.

Les valeurs des paramètres des spectres de relaxation des trois polymères sont renseignées dans le **tableau 2.7**. Les viscosités à cisaillement nul calculées à partir des spectres de relaxation  $\eta_0 = \sum_{i=1}^N G_i \lambda_i$  sont comparées aux viscosités à cisaillement nul du modèle de Cross.

Il apparaît que le PPR3221, le polymère le plus visqueux parmi les trois matériaux étudiés, présente le temps de relaxation le plus important. C'est donc lui qui, à priori, présenterait le caractère viscoélastique le plus affirmé.

En représentant  $\eta''$ , partie imaginaire de la viscosité dynamique, en fonction de

TABLE 2.7 – Paramètres de modélisation du comportement des polymères de l'étude - spectre de relaxation :

	PPR10232	PPR3221	MR10MX0
Nombre de modes	2	4	4
$(\lambda_i ; G_i)$	(2.16E-1 ; 4.79E2)	(6.10E0 ; 1.11E3) (7.22E-1 ; 7.92E3)	(1.66E0 ; 1.44E2) (2.11E-1 ; 3.22E3)
$([s] ; [Pa])$	(1.07E-2 ; 4.32E4)	(9.12E-2 ; 2.82E4) (9.78E-3 ; 7.13E4)	(3.19E-2 ; 2.67E4) (4.13E-3 ; 1.09E5)
$\eta_{0,\text{spectre}}$ [Pa.s]	6.08E2	1.56E4	2.22E3
$\eta_{0,\text{Cross}}$ [Pa.s]	6.87E2	1.68E4	2.28E3

$\eta'$ , partie réelle de la viscosité dynamique, le diagramme Cole-Cole du matériau est obtenu. La **figure 2.28** représente le diagramme Cole-Cole pour le PPR3221 (voir **annexe C**, **figures C.7 et C.8** pour le PPR10232 et le MR10MX0). La **figure 2.29** regroupe les trois diagrammes normés.

La viscosité dynamique est alors représentée par l'expression analytique suivante :

$$\eta^*(\omega) = \frac{\eta_0}{1 + (j\omega\lambda_m)^{1-h}} \quad (2.7)$$

avec  $\eta_0$  l'interception de l'axe des réels par l'arc de cercle,  $\lambda_m$  le temps de relaxation correspondant à l'inverse de la fréquence à laquelle la viscosité imaginaire est maximale et  $h$  un paramètre compris entre 0 et 1 et indiquant l'excentricité de l'arc

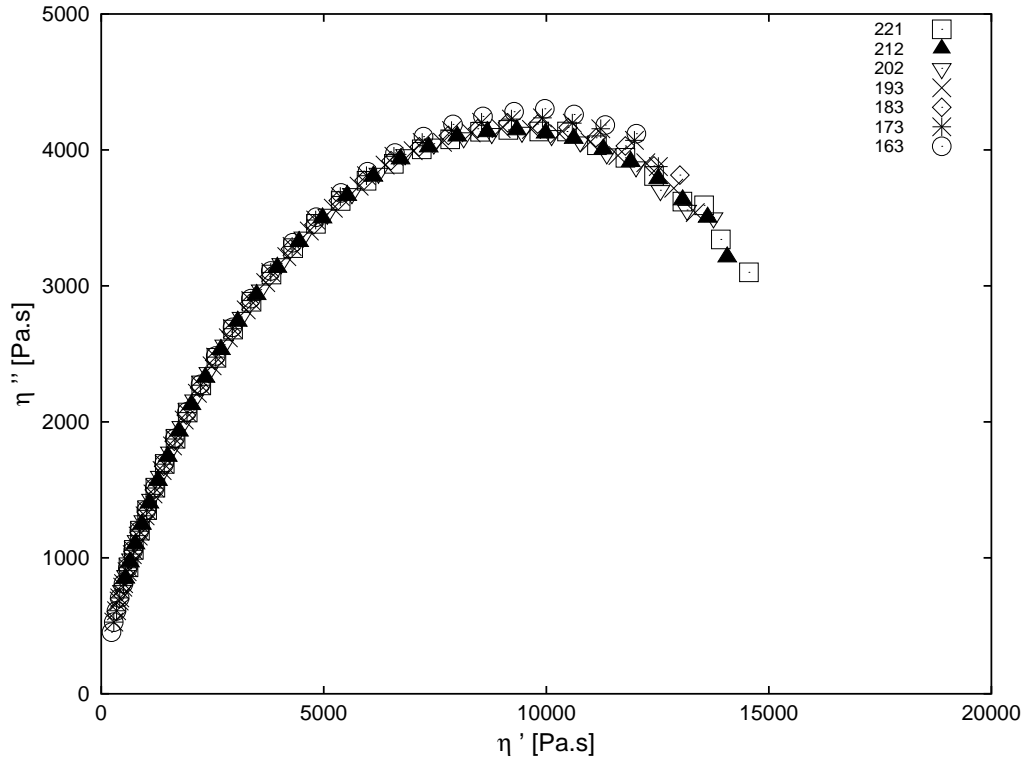


FIGURE 2.28 – Diagramme Cole-Cole - PPR3221



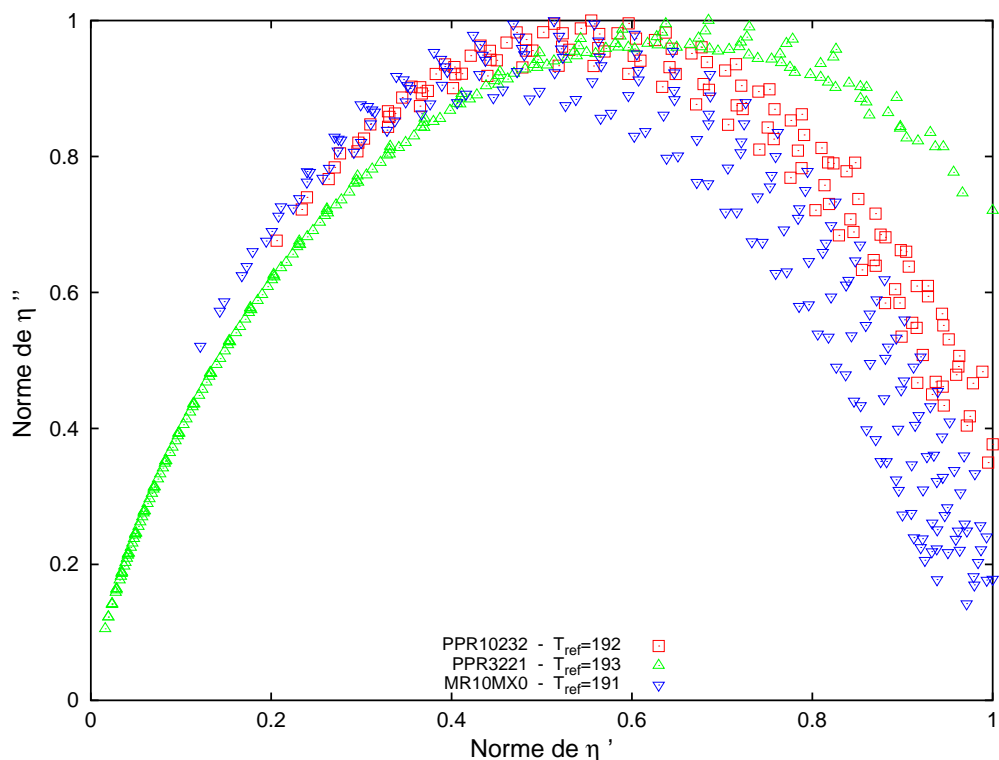


FIGURE 2.29 – Diagramme Cole-Cole normé - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

de cercle par rapport à l'axe des réels.

En utilisant la méthode des régressions circulaires, les paramètres des cercles épousant au mieux les diagrammes Cole-Cole sont identifiés. La **figure 2.30** montre l'arc de cercle identifié et le diagramme Cole-Cole pour le PPR3221 (voir **annexe C**, **figures C.9 et C.10** pour le PPR10232 et le MR10MX0). La **figure 2.31** regroupe les trois diagrammes normés et les modèles normés, c'est-à-dire normés par la valeur maximale des composantes réelles et imaginaires, de chaque matériau respectivement, afin d'étudier les diagrammes Cole-Cole des trois matériaux à la même échelle.

Les valeurs des paramètres sont regroupées dans le **tableau 2.8**, les viscosités à cisaillement nul des modèles de Cross, des spectres de relaxation et du modèle de Cole-Cole sont comparées.

TABLE 2.8 – Paramètres de modélisation du comportement des polymères de l'étude - modèle de Cole-Cole :

	PPR10232	PPR3221	MR10MX0
$\lambda_m$ [s]	7.50E-2	4.77E-1	7.85E-2
$h$	0.44	0.48	0.39
$\eta_{0,\text{Cole-Cole}}$ [Pa.s]	6.90E2	1.84E4	2.30E3
$\eta_{0,\text{spectre}}$ [Pa.s]	6.08E2	1.56E4	2.22E3
$\eta_{0,\text{Cross}}$ [Pa.s]	6.87E2	1.68E4	2.28E3

Les valeurs de viscosité à cisaillement sont cohérentes entre les trois modèles. Le

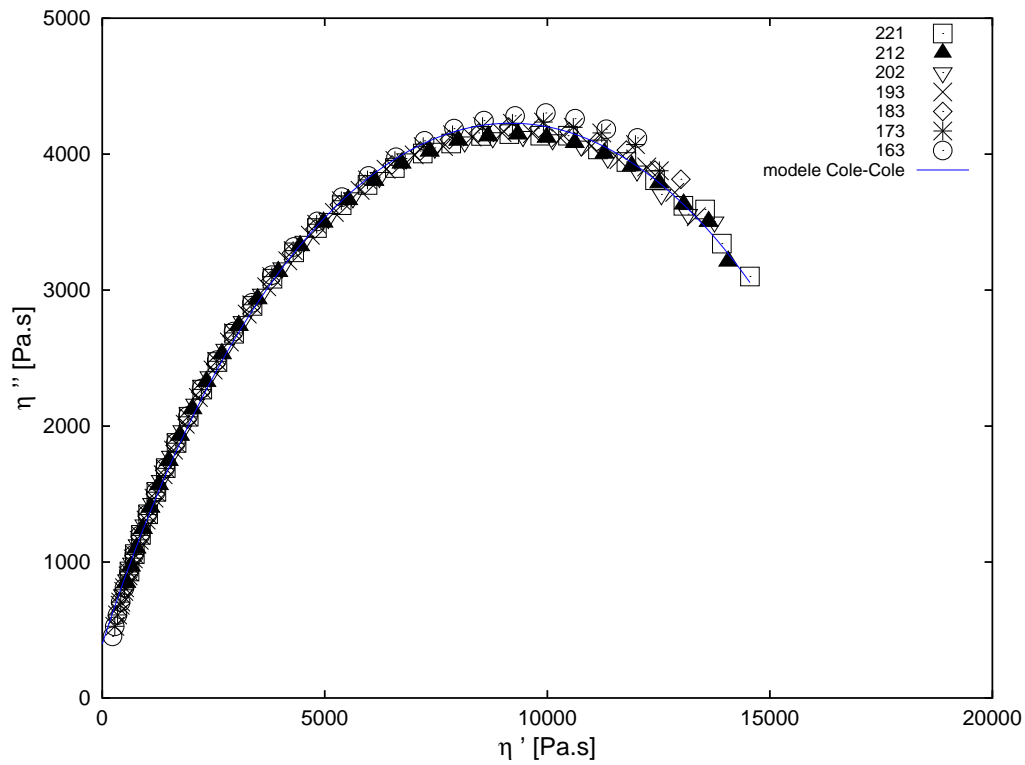


FIGURE 2.30 – Diagramme Cole-Cole et arc de cercle modèle - PPR3221

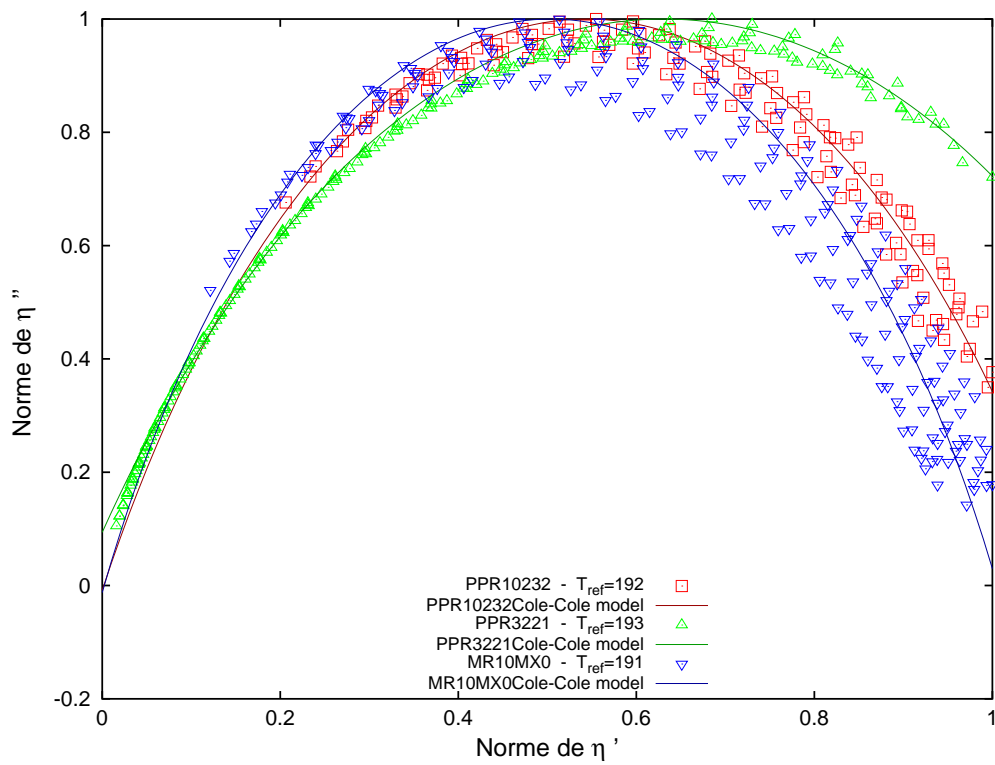


FIGURE 2.31 – Diagramme Cole-Cole normé et arcs de cercle modèles - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

modèle de Cole-Cole présentant des valeurs plus proches du modèle de Cross que des spectres de relaxation. Les temps de relaxation Cole-Cole sont comparés aux temps de relaxation du modèle de Cross. En prenant ces derniers comme références, les écarts observés sont de 79%, 53% et 80% pour le PPR1032, le PPR3221 et le MR10MX0 respectivement. De même, les paramètres d'excentricités des diagrammes Cole-Cole sont comparés au indices de rhéofluidification des modèles de Cross et les écarts sont respectivement de  $-17\%$ ,  $-38\%$  et  $-31\%$ .

Bien que les formes du modèle de Cross et de Cole-Cole soient mathématiquement proches, les paramètres ne sont pas équivalents, exception faite de la viscosité à cisaillement nulle dont les valeurs sont très proches entre les différents modèles. Le temps de relaxation du modèle de Cross correspond à la fréquence à laquelle le fluide rhéofluidifie, tandis que le temps de relaxation Cole-Cole est un temps de relaxation moyen. Ce temps de relaxation moyen a également été comparé à la moyenne des temps de relaxation des spectres de temps de relaxation mais aucune équivalence n'a été trouvée.

## 2.4 Confrontation état solide/état fondu - Approche expérimentale et modélisation de la surfusion

### 2.4.1 Étude bibliographique : Cristallisation sous déformation

L'utilisation de la loi de Cross suppose que le polymère est à l'état amorphe. Pour un semi-cristallin comme les matériaux de cette étude, cela correspond à l'état fondu. La cristallisation est donc supposée ne pas intervenir durant le procédé. Cette hypothèse a été consolidée par les observations faites à travers les essais de DSC à différentes vitesses de refroidissement.

**Thevenon et Fulchiron (2013, 2014b,a)** étudient la morphologie de PP isotactiques et son évolution à des températures inférieures, mais proches, de la température de fusion, sous déformation. La microstructure des PP copolymères aléatoires n'est, selon toute vraisemblance, pas la même que les PP isotactiques de par la présence de motifs d'éthylène qui vont casser la monotonie des chaînes de motif propylène. Cependant ces études sont utiles aux présents travaux car elles renseignent sur l'effet de la vitesse de refroidissement et de l'orientation induite par la déformation sur l'évolution de la morphologie.

**Monasse et Haudin (1988)** montre que la copolymérisation aléatoire ne change pas fondamentalement l'évolution de la morphologie, en comparaison avec les observations faites pour des PP isotactiques. Seule la température de transition dans l'évolution de la croissance des germes est abaissée. Ceci est attribué à des monomères d'éthylène rejetés à la surface des lamelles de propylènes, conduisant à une diminution de la température d'équilibre thermodynamique et à une diminution de l'énergie de surface. Les observations faites par l'étude de PP isotactiques peuvent être transposées au PP copolymères.

**Monasse (1995); Hammami et Spruiell (1995); Tribout et collab. (1996); Vleeshouwers et Meijer (1996)** étudient la cristallisation induite par cisaillement sur un PP copolymère "bloc". L'effet induit par cisaillement est fortement dépendant du temps de relaxation des chaînes macromoléculaires : plus les chaînes sont grandes, plus l'effet induit par cisaillement est important.

**Haudin et collab. (2002)** étudient l'effet d'un écoulement de cisaillement sur la vitesse de croissance des structures cristallines de différents PP. L'écoulement de cisaillement est obtenu au voisinage d'une fibre de verre en mouvement de translation dans le fluide. Il est observé que sous conditions statiques, les défauts dans les chaînes macromoléculaires comme la présence de motifs d'éthylène dans le cas de la copolymérisation aléatoire sont de première importance pour la vitesse de croissance : plus il y a d'éthylène, plus basse est la vitesse de croissance. Sous cisaillement, la vitesse de croissance augmente. Une loi est identifiée sur l'évolution de cette vitesse de croissance. Il apparaît qu'en-dessous d'une valeur critique, la cristallisation n'est pas influencée par l'écoulement de cisaillement. Cette valeur critique est directement liée à la masse entre enchevêtrements, et donc au temps de relaxation.

Les travaux de **Kumuraswamy et collab. (2000); Nogales et collab. (2001); Koscher et Fulchiron (2002); Somani et collab. (2006)** sont dans la même optique et montrent via des observations par diffraction de rayons X que plus la masse molaire en masse  $M_w$  est grande, plus la vitesse de cristallisation statique est basse et plus le cisaillement est grand, plus la vitesse de cristallisation induite est grande. Un grand  $M_w$  implique de longues chaînes, donc de grands temps de relaxation. Sous cisaillement, les chaînes macromoléculaires s'orientent, promouvant ainsi la formation de structure shish-kebab.

**Housmans et collab. (2009)** étudient la cristallisation induite par écoulement de PP copolymérisés PE via des mesures de DSC et de rhéométrie. L'effet de l'écoulement décroît en présence d'éthylène, de même que les températures de fusion et de cristallisation. La cristallisation induite par l'écoulement dépend donc du taux d'éthylène présent dans la formulation.

**Sarrabi et collab. (2013)** étudient la cinétique de cristallisation d'un PP métallocène durant le refroidissement sous conditions thermiques du procédé de rotomoulage et utilisent une approche thermodynamique. Ils mettent en avant la vitesse de cristallisation des PP obtenues par catalyses métallocènes, qui est bien plus rapide que celle des PP obtenus par procédé Ziegler-Natta. Cette grande vitesse de cristallisation empêche la visualisation de l'évolution des structures cristallines pour des vitesses de refroidissement pas suffisamment basse.

Des modèles permettent d'intégrer le changement de phase et le comportement en déformation, comme le modèle auto-cohérent de **Makradi et collab. (2005); Ahzi et collab. (2003)**. La détermination des paramètres de ce modèle est limitée à une température, les essais doivent donc être menés sous condition isotherme. **Poitou et collab. (2003)** ont développé un modèle thermodynamique découplant la résolution des inconnues d'écoulement et des inconnues matériaux. Les travaux de **Chevalier et Marco (2007)** utilisent une méthode probabiliste pour prendre en compte la dispersion de la température durant les essais d'étirage uni- et bi-axiaux.

Le but est ici d'explorer plus avant le phénomène de cristallisation et pas seulement l'effet de la vitesse de refroidissement mais aussi l'effet de la déformation.

L'évolution de la viscosité pendant le refroidissement sous différents taux de cisaillement et à différentes vitesses de refroidissement moyennes est étudiée via des

mesures de rhéométrie dynamique à l'état fondu. Des mesures de DSC suivant les mêmes évolutions de température que les mesures de rhéométrie dynamique devraient permettre de faire la distinction entre phénomènes statiques et phénomènes induits par la déformation.

### 2.4.2 Sollicitations dynamiques : approches solide et fondue

Les mesures de DMA consistent à appliquer une sollicitation dynamique sur un échantillon à différentes fréquences. Ici, les mesures de DMA sont réalisées sous conditions de traction uni-axiale, au sein du laboratoire MATEIS par Renaud RINALDI. Dans le cas de la DMA, l'échantillon est initialement à température ambiante et est chauffé en cours d'essais jusqu'à devenir trop malléable pour être tenu par l'outillage, ou bien trop peu résistant pour que sa réponse aux sollicitations soit détectée par le capteur de force.

Trois fréquences sont imposées :  $[0.4, 4, 40]$  Hz. Un balayage en températures est réalisé depuis  $30^{\circ}\text{C}$  jusqu'au plus proche de la température de fusion. La température la plus haute est imposée par la sensibilité du capteur et par la tenue de l'échantillon dans les mors. Si l'échantillon n'est pas suffisamment rigide, il s'échappe des mors, conduisant ainsi à la fin de l'essai. La température limite est ainsi fixée à  $150^{\circ}\text{C}$ , après deux essais visant à identifier cette dernière. La déformation est fixée à 0.5%, avec une variation dynamique de 0.3%. La variation dynamique est l'amplitude de l'évolution sinusoïdale de la déformation imposée.

Les mesures RDA, correspondant à des mesures de rhéométrie sous régime oscillatoire, suivent le même principe. Une sollicitation dynamique en cisaillement est imposée via l'utilisation de plateaux parallèles mesurant 25mm de diamètre. À l'inverse de la démarche des essais en DMA, l'échantillon est initialement à l'état fondu, à une température supérieure à sa température de fusion. Il est ensuite refroidi en cours d'essai jusqu'à ce que sa réponse à la sollicitation imposée s'approche trop de la tolérance du capteur de force. Les essais sont réalisés à 8% de déformation, toujours dans le domaine linéaire.

Les résultats des essais de DMA et de RDA concernant le PPR3221 sont présentés **figure 2.32**. Les modules complexes en cisaillement mesurés en RDA sont comparés aux modules mesurés en DMA en les multipliant par un facteur  $2(1 + \nu)$ . Le paramètre  $\nu$  est supposé égal à 0.5, soit sous hypothèse d'incompressibilité, ce qui est justifié en considérant que le polymère est à l'état fondu.

La température à laquelle les propriétés mécaniques varient brutalement diffère. En partant de l'état solide (essais DMA), les propriétés mécaniques diminuent à une température plus élevée que celle à laquelle les propriétés mécaniques augmentent en partant de l'état fondu (essais RDA). En partant du principe que cette variation de propriétés mécaniques est attribuée à une évolution de la morphologie, ce décalage est alors la signature de la surfusion, c'est-à-dire l'écart entre température de fusion et température de cristallisation.

Les résultats de DMA et de RDA montrent donc des changements de pentes dans l'évolution des modules qui interviennent à des températures différentes. Cette différence est attribuée à la zone de surfusion. Comme il a été vu via les mesures de DSC à différentes vitesses de refroidissement, la température de cristallisation dépend de la cinétique de refroidissement.

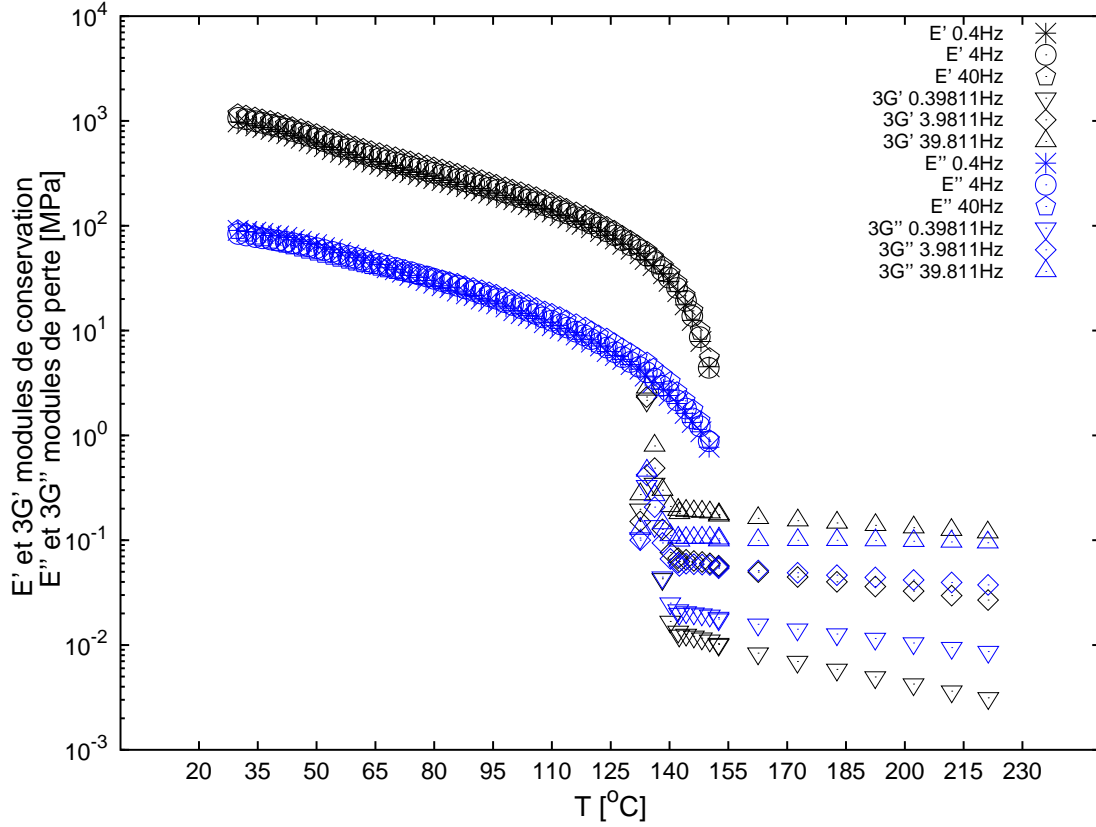


FIGURE 2.32 – Évolution des module  $3G'$  et  $3G''$  (RDA) et  $E'$  et  $E''$  (DMA) - PPR3221

La **figure 2.33** représente l'évolution des fractions transformées  $\alpha$  déduites des mesures précédentes.

Les valeurs des modules solides sont supposées tendre vers les valeurs des modules fondus lorsque la température est supérieure à la température de fusion. De même, les valeurs des modules fondus sont supposées tendre vers les valeurs des modules solides lors la température est inférieure à la température de cristallisation. Les  $\alpha$  sont calculés comme suit :

$$\alpha_{solide} = 1 - \frac{\ln(E_0(T)) - \ln(E(T))}{\ln(E_0(T)) - \ln(2(1+\nu)G_0(T))} \quad (2.8)$$

$$\alpha_{fonde} = \frac{\ln(2(1+\nu)G(T)) - \ln(2(1+\nu)G_0(T))}{\ln(E_0(T)) - \ln(2(1+\nu)G_0(T))} \quad (2.9)$$

avec  $T$  la température,  $\ln(E_0(T))$  l'évolution linéaire du log des modules solides hors changement de phase en fonction de la température,  $\ln(2(1+\nu)G_0(T))$  l'évolution linéaire du log des modules fondus hors changement de phase en fonction de la température. Les évolutions linéaires  $\ln(E_0(T))$  et  $\ln(2(1+\nu)G_0(T))$  sont des fonctions affines correspondant respectivement aux pentes initiales des mesures en DMA et en RDA. En utilisant ces fonctions affines, les plateaux à basses et hautes températures peuvent être obtenues.

Cette dernière figure permet de mieux visualiser les variations brutales des modules et le décalage des températures auxquelles ces variations s'opèrent selon que

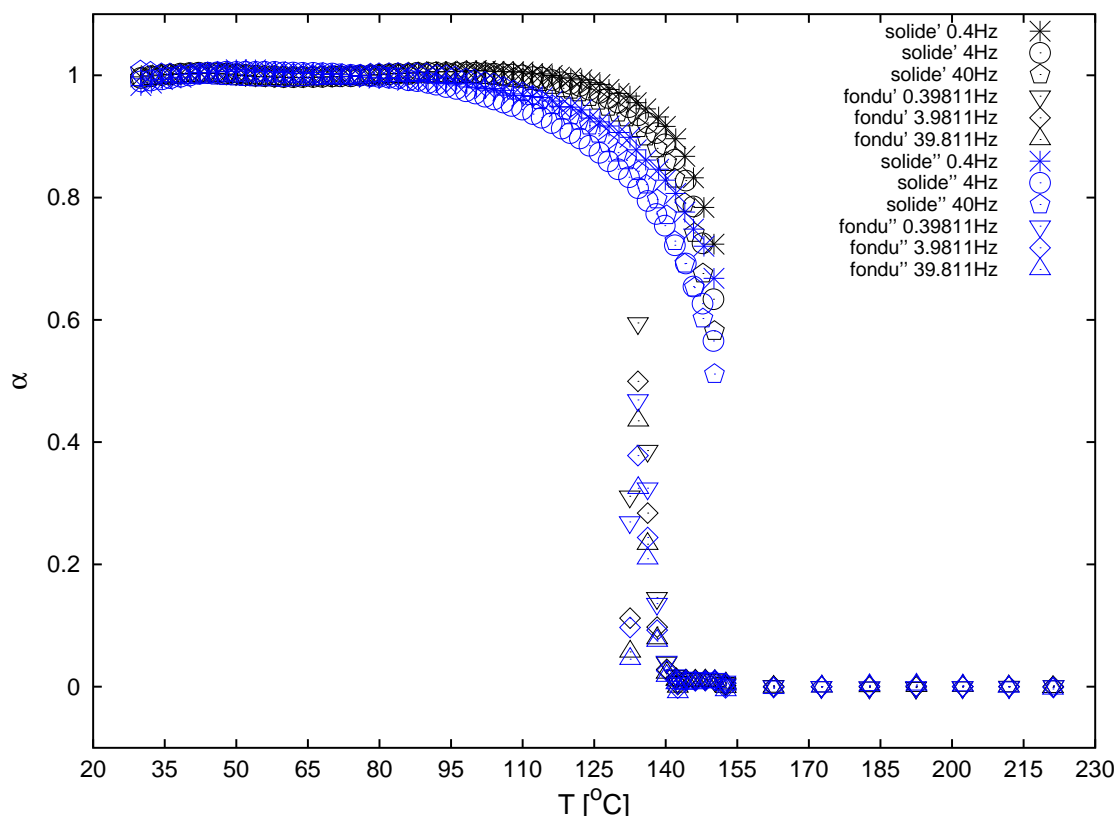


FIGURE 2.33 – Évolution des fractions transformées  $\alpha$  déduites des modules mesurés en RDA et DMA - PPR3221

le matériau est initialement à l'état solide puis chauffé ou initialement à l'état fondu puis refroidi.

D'autres essais RDA sont réalisés afin de tester l'effet de la cinétique de refroidissement moyenne sur la température d'augmentation des propriétés mécaniques.

### 2.4.3 Influence d'un cisaillement sur la cristallisation

Une seconde expérience consiste à fixer une seule fréquence et réaliser un balayage en température. En partant de l'état fondu et en faisant varier le temps d'attente entre deux mesures, il est alors possible d'étudier l'effet de différentes vitesses de refroidissement moyennes sur l'augmentation des propriétés mécaniques, liée au phénomène de cristallisation. Le temps d'attente entre deux mesures, soit le temps pendant lequel l'échantillon est à une température donnée, varie selon trois valeurs : 3s, 30s et 300s. Les fréquences de sollicitation sont imposées à [1, 10, 100]rad.s<sup>-1</sup>.

Comme cela a été précisé précédemment, les mêmes évolutions de température ont été imposées en DSC pour évaluer les possibles différences entre conditions statiques et conditions sous cisaillement.

La température d'augmentation des propriétés mécaniques lors des essais RDA est déduite des courbes des **figures 2.34, 2.35, 2.36**. Ces courbes représentent les modules mesurées au cours des essais divisés par les modules mesurés à la température initiale (la plus haute température donc). La température d'augmen-

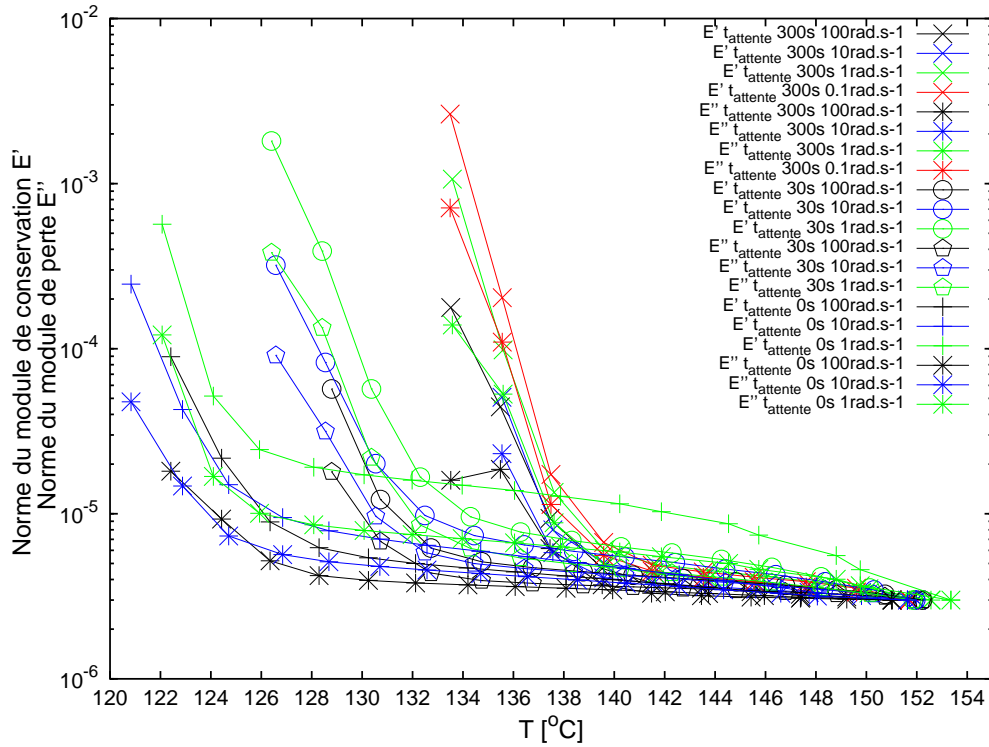


FIGURE 2.34 – Propriétés mécaniques normées en fonction de la température - PPR10232 - différents temps d'attente et différentes fréquences - 8% de déformation

tation des propriétés mécaniques est définie comme la température à laquelle la tangente à la partie où les propriétés augmentent intercepte la tangente à la courbe aux plus hautes températures. Ces températures et les températures de début et de maximum des pics des résultats de DSC suivant les mêmes températures que les essais RDA, représentées **figure 2.37**, sont reportées sur le graphique représentant les températures de début et de maximum de pic des DSC à différentes vitesses de refroidissement (**figure 2.38**).

Aucun effet particulier de la déformation ou de la vitesse de déformation n'est observé pour les deux copolymères aléatoires. Cependant, l'effet de la cinétique de refroidissement demeure identique à celui observé les premières mesures DSC, à savoir que plus la vitesse de refroidissement est grande, plus la température à laquelle la cristallisation intervient est basse.

Comme souligné dans les travaux de **Housmans et collab. (2009)**, le taux d'éthylène dans la formulation impacte sur la cinétique de cristallisation sous cisaillement et sous conditions passives. Plus le taux d'éthylène est élevé, moins le cisaillement influe sur la cristallisation. Et à l'inverse, sous conditions statiques, la vitesse de cristallisation augmente avec le taux d'éthylène. Les travaux de **Haudin et collab. (2002)**, portant sur l'étude de la cristallisation induite sous cisaillement, mettent en lumière l'effet de la présence de défauts sur le taux de croissance sous conditions passives, tandis que le paramètre le plus influent sous cisaillement est la masse molaire en poids  $M_w$ .

Ces résultats concernant le PPR3221 contrastent avec l'idée communément admise d'une influence majeure du cisaillement et de la déformation sur la cristallisation. Ils sont cependant en accord avec les observations faites dans la littérature. Le



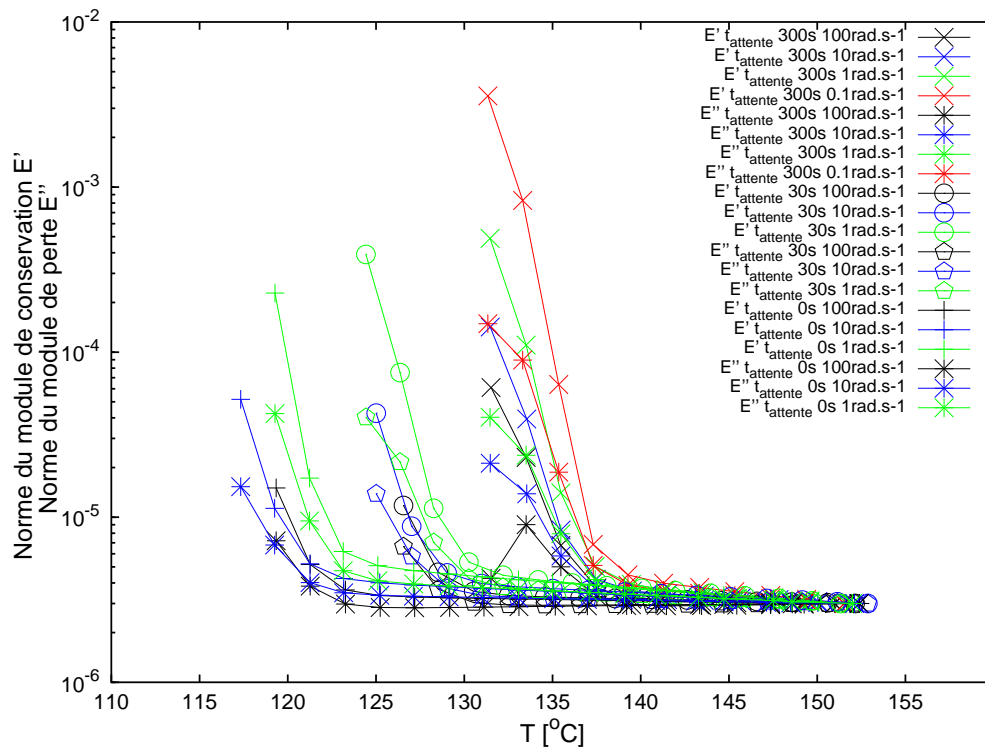


FIGURE 2.35 – Propriétés mécaniques normées en fonction de la température - PPR3221 - différents temps d'attente et différentes fréquences - 8% de déformation

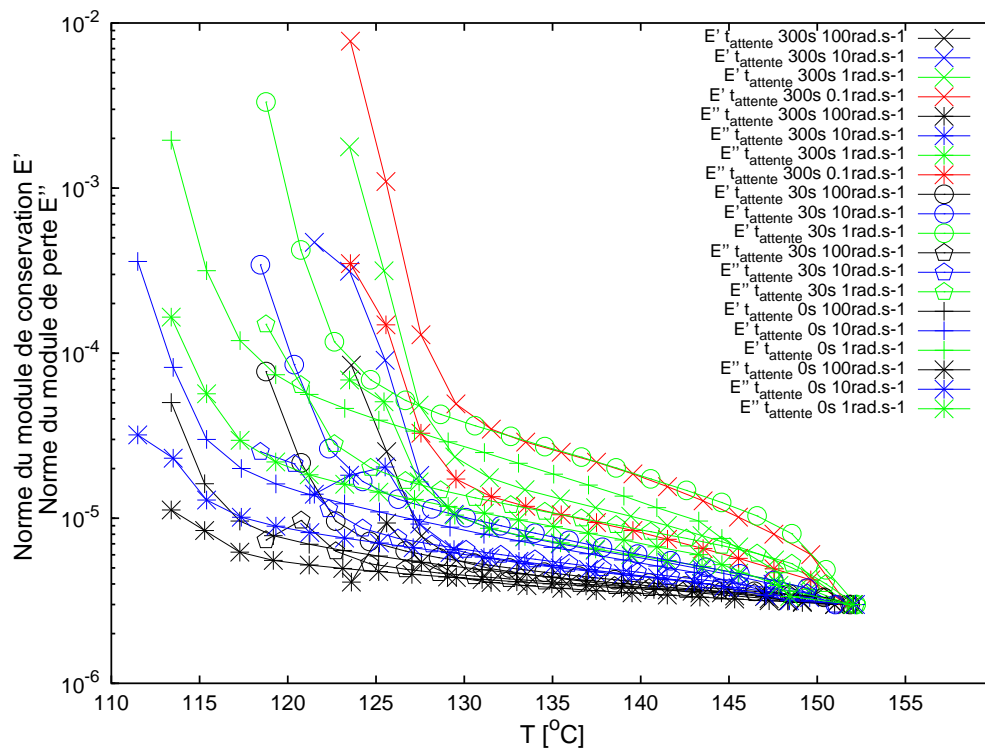


FIGURE 2.36 – Propriétés mécaniques normées en fonction de la température - MR10MX0 - différents temps d'attente et différentes fréquences - 8% de déformation

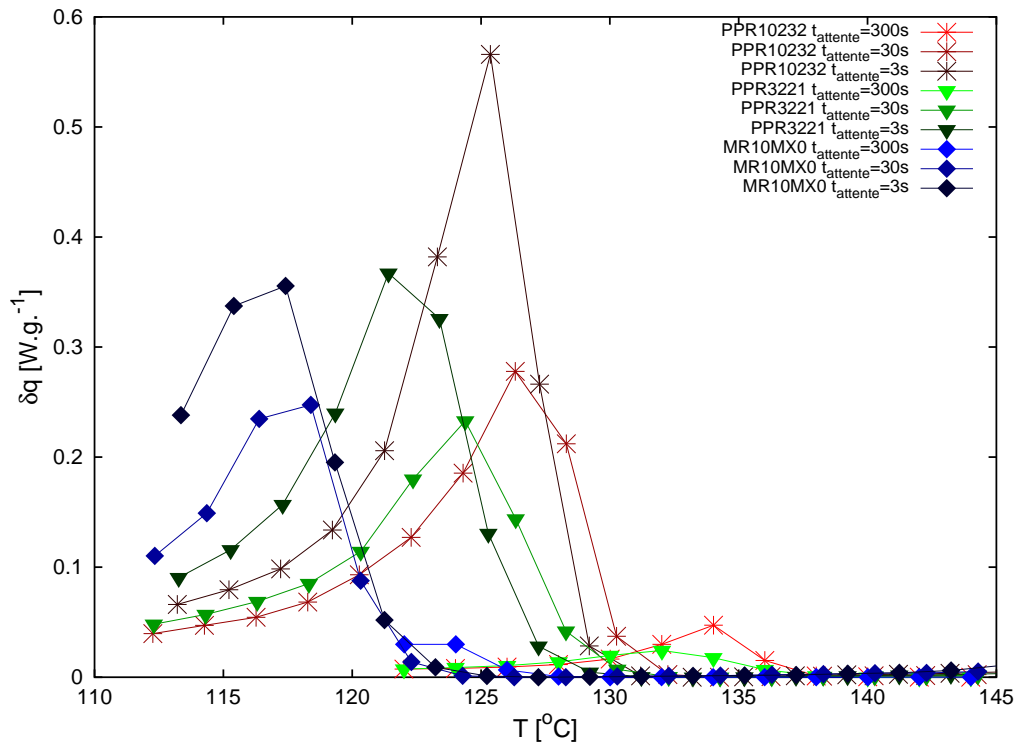


FIGURE 2.37 – Flux de chaleur sous les mêmes conditions de température que les essais RDA - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu)

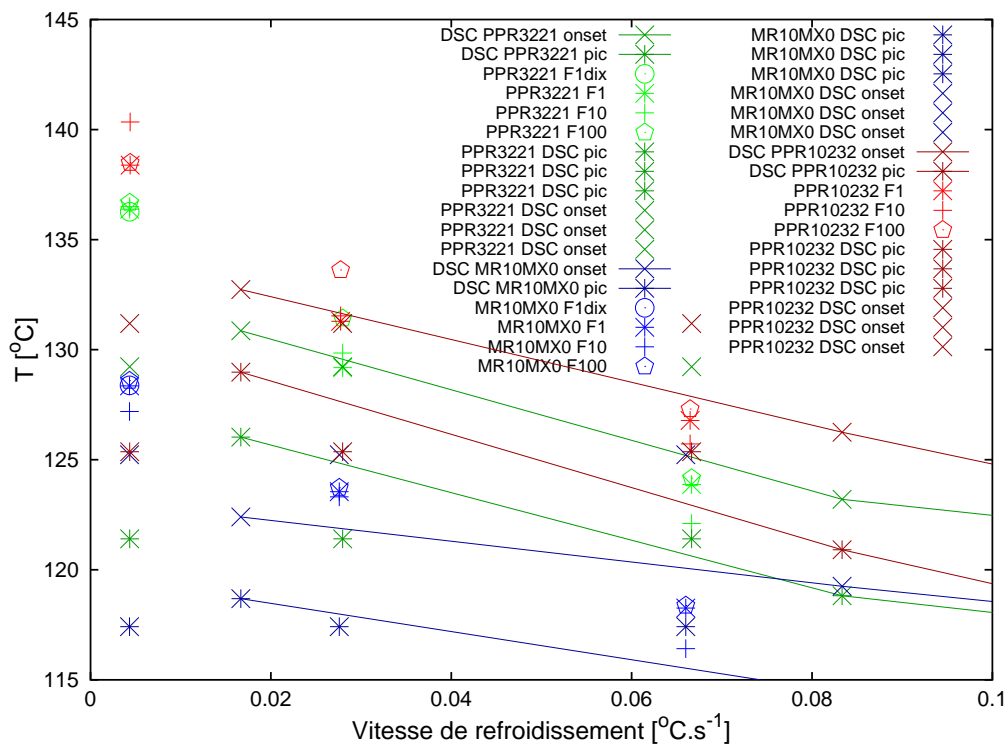


FIGURE 2.38 – Températures d'augmentation des propriétés mécaniques sous conditions de cisaillement - Températures de début et de maximum de pic sous conditions passives - différentes vitesses de refroidissement

PPR3221, de même que les PPR10232 et MR10MX0, sont des matériaux dont la formulation confère aux pièces finales une bonne transparence. Ceci implique donc la présence d'agent inhibiteur de croissance des structures cristallines. Ces agents sont autant de défauts qui vont donc empêcher une croissance rapide sous conditions passives. Il est possible également de supposer que les chaînes macromoléculaires constituant le matériau ne sont pas assez longues pour qu'un cisaillement puisse promouvoir efficacement la cristallisation.

Concernant le MR10MX0, l'augmentation des modules est plus progressive que pour les PPR10232 et PPR3221 qui eux voient une augmentation brutale de leurs modules. De plus, la pente de cette augmentation diminue lorsque le taux de cisaillement augmente. Le MR10MX0 est donc sensible au cisaillement. Plus la vitesse de cisaillement est grande, plus l'augmentation est brutale, et ce quel que soit le temps d'attente imposé. Toutefois, la température de transition de comportement ne change pas outre mesure.

#### 2.4.4 Mesures DSC après mise en forme



FIGURE 2.39 – Photo d'un flacon en PPR3221 après prélèvement des échantillons

Des échantillons sont prélevés le long d'une pièce soufflée en PPR3221, comme illustré par la **figure 2.39**. Une rampe de chauffe à  $10^{\circ}\text{C}.\text{min}^{-1}$ , en partant de la température ambiante ( $23^{\circ}\text{C}$ ) jusqu'à  $200^{\circ}\text{C}$ , est imposée aux échantillons. Si, lors du procédé, la préforme soufflée cristallisait par endroit sous l'effet de l'étirage, cela devrait se retrouver dans l'allure des pics de fusion, puisque les structures cristallines seraient différentes selon l'étirage localement subi.

La **figure 2.40** représente les résultats de DSC ordonnés selon la localisation sur la pièce. La **figure 2.41** reprend les mêmes résultats, mais ordonné selon l'étirage local subi.

Les résultats de DSC ne montrent pas de différences significatives entre les pics de fusion observés. Les étirages locaux subis par la préforme lors du soufflage vont de quasiment 1 pour les échantillons prélevés au goulot jusqu'à plus de 5 aux endroits les plus étirés. Si une cristallisation induite sous sollicitation se produisait durant le procédé, la gamme d'étirage permettrait d'en voir l'effet. Le peu d'écart sur les pics de fusion renforce donc les observations faites à travers les mesures de RDA, c'est-à-dire que la cristallisation induite n'est pas observée. Il n'y a donc pas d'effet visible de la sollicitation sur la cristallisation concernant les mesures réalisées sur les flacons soufflés en PPR3221.

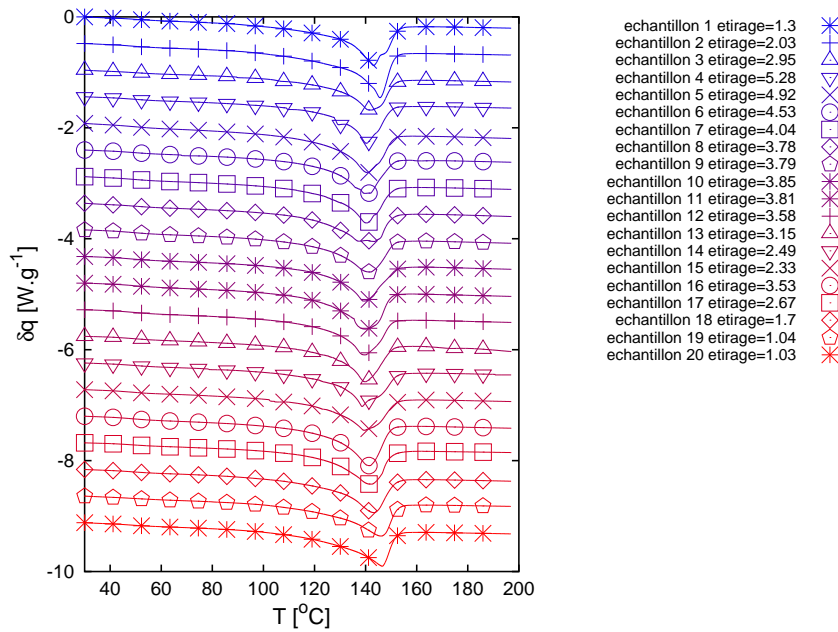


FIGURE 2.40 – Résultats de DSC pour les échantillons prélevés le long d'un flacon en PPR3221 ordonnés selon l'emplacement sur le flacon - décalage de  $0.48\text{W.g}^{-1}$  entre chaque courbe

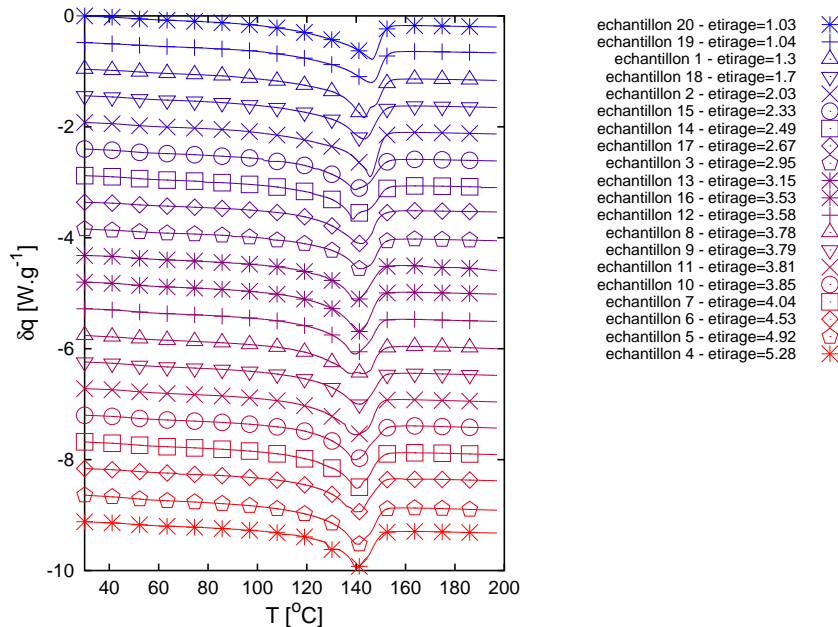


FIGURE 2.41 – Résultats de DSC pour les échantillons prélevés le long d'un flacon en PPR3221 ordonnés selon l'étirage local subi par la matière - décalage de  $0.48\text{W.g}^{-1}$  entre chaque courbe



## Chapitre 3

### Simulation numérique du procédé

## 3.1 Présentation du modèle numérique

### 3.1.1 Étude bibliographique : Simulation numérique des procédés de soufflage

L'injection-étirage-soufflage est un procédé proche de celui présenté ici et de nombreux travaux de recherches concernent ce procédé plus conventionnel. Un tour d'horizon de la simulation numérique des procédés de soufflage est proposé par **Bellet et collab. (2002)**. **Wang et collab. (1998, 2000)** simulent l'injection-étirage-soufflage de bouteille en PET, en utilisant une loi viscoplastique pour représenter le comportement de durcissement sous déformation du matériau. Dans les travaux de **Wang et collab. (1998)**, différentes configurations d'étirage/soufflage sont présentées et les évolutions de la préforme obtenues se rapprochent des observations faites par **Huang et collab. (2007)**. **Hopmann et collab. (2011)** utilise une méthode intégrale pour simuler ce procédé. Une première étape concerne la phase de chauffe de la préforme tandis qu'une deuxième étape est dédiée à la phase d'étirage-soufflage. La résistance de la bouteille à un chargement donné est ensuite étudiée à travers le logiciel de calcul par éléments finis ABAQUS. **Yang et collab. (2004b,a)** simulent l'injection-étirage-soufflage de bouteille en PET sous hypothèse axisymétrique en utilisant également ABAQUS. L'approche membrane permet de diminuer le nombre de nœuds par élément mais la détermination du champ de température perd en précision car les inconnues sont définies spatialement sur un seul nœud dans l'épaisseur. Ceci est en désaccord avec les observations expérimentales qui montrent que les champs de température et de contraintes sont fortement non-linéaires. Les études de **Yang et collab. (2004b,a)** proposent donc de prédire les propriétés du produit fini, et une bonne prédiction des champs de température et de contraintes est donc nécessaire. L'auteur utilise des éléments solides dans ses calculs. Il est fait référence au modèle viscoplastique utilisé par **Wang et collab. (2000)** et au modèle viscoélastique utilisé de **Schmidt et collab. (1998)**. Ces modèles offrent une bonne prédiction de la répartition d'épaisseurs finale mais seul le modèle de Wang est à même de prédire l'historique des déformations. Quoi qu'il en soit ces modèles sont des modèles construits sur les observations des essais uniquement, et sont donc limités aux conditions expérimentales, et au voisinage des ces conditions expérimentales, dans lesquels les mesures ont été réalisées. Mais il est difficile d'établir un protocole expérimental correspondant aux conditions du procédé, les températures, cinétiques thermiques, déformations et vitesses de déformations rencontrés dans le procédé ne peuvent être reproduits en laboratoire. C'est pourquoi le modèle de Buckley est préféré par **Yang et collab. (2004b,a)**.

**Groot et collab. (2012)** ont modélisé la mise en forme en soufflage-moulage par une approche analytique, le matériau étant décrit par un problème d'écoulement de Stokes. Cette approche consiste à trouver la position du domaine interne de la pièce soufflée à un instant  $t$  tel que le domaine externe soit égale au domaine du moule. La formulation mathématique ainsi posée permet d'inverser le problème et de déterminer par optimisation numérique le profil de la préforme selon la forme de la pièce finale voulue.

Des modèles viscoélastiques sont disponibles sous POLYFLOW. Cependant, l'uti-

lisation de modèle viscoélastique type KBKZ n'est autorisée que sous approche stationnaire sous hypothèse axi-symétrique, ou bien sous approche transitoire sous hypothèse membrane.

Le procédé IBMSS présente également des similitudes avec le procédé d'extrusion-soufflage, dans le sens où la préforme est soufflée directement après avoir été injectée, quand la matière n'est pas encore refroidie. La matière de la préforme, toujours amorphe et au dessus de sa température de cristallisation, présenterait un comportement similaire à celui d'une paraison extrudée puis soufflée. **Fukuzawa et collab. (2010)** ont simulé la mise en forme d'un flacon multi-couches (PEhd-PEbd-PEhd) par le procédé d'extrusion soufflage. La géométrie est représentée en 3D, le calcul est non-isotherme et les matériaux obéissent à une loi de Bird-Carreau. Les résultats d'épaisseurs finales sont surestimés par rapport aux épaisseurs vraies. Cette surestimation, bien qu'acceptable, peut s'expliquer par le faible nombre de mailles dans l'épaisseur de chaque couche, inhibant l'expression de la loi de comportement durant la simulation du procédé car la viscosité de chaque matériau n'est définie qu'en trois nœuds dans l'épaisseur. L'identification des paramètres des lois de comportement des matériaux de cette étude peut également participer à ces écarts, la dépendance thermique n'étant déterminée qu'à partir de trois températures.

Dans la présente étude, la modélisation du procédé se fait par l'utilisation d'un modèle de Cross, le polymère étant supposé à l'état fondu durant le procédé.

La modélisation de l'évolution de la pression de soufflage en fonction de l'évolution du volume n'est pas à négliger. **Pham et collab. (2004)**, **Fatt et Ouyang (2008)**, **Yang et collab. (2000)** et **Groot et collab. (2010)** représentent l'évolution de l'écoulement d'air dans la cavité de la pièce à souffler durant la phase de soufflage. Une loi thermodynamique lie l'évolution du volume encapsulé et l'établissement de la pression le long de la paroi interne de la préforme. Plus récemment, **Menary et collab. (2010)** ont étudié le soufflage libre d'une préforme en PET et l'ont simulée sous ABAQUS 6.5. Ils ont ainsi montré qu'il est plus pertinent de simuler l'évolution du flux d'air que d'imposer une force normale seule. **Schmidt et collab. (1998)** étudie l'évolution de la pression dans une pièce creuse et souligne la nécessité de considérer cette évolution dans la simulation du procédé de soufflage. **Bellet et collab. (2002)** font la même observation dans leur tour d'horizon des simulations numériques des procédés de soufflage. Les travaux de **Salomeia et collab. (2015)** proposent plus récemment un protocole de mesure et une modélisation du débit d'air appliqué au procédé d'injection-étirage-soufflage. Ce protocole serait à appliquer afin de pouvoir modéliser plus pertinemment l'évolution de la pression dans le procédé IBMSS.

À défaut, le présent modèle s'attache à prendre en compte les caractéristiques principales du champ thermique sur une géométrie axisymétrique. Ce modèle simple permet l'exploration de la sensibilité des résultats aux différents paramètres d'entrée. Car bien que l'approche soit simplifiée (géométrie 2D axisymétrique, problème thermique simplifié), la physique demeure robuste.

### 3.1.2 Présentation du procédé simulé

Le procédé permet la mise en forme par injection-soufflage de pièces creuses sur une presse d'injection standard. C'est un procédé séquentiel et un moule spécial a



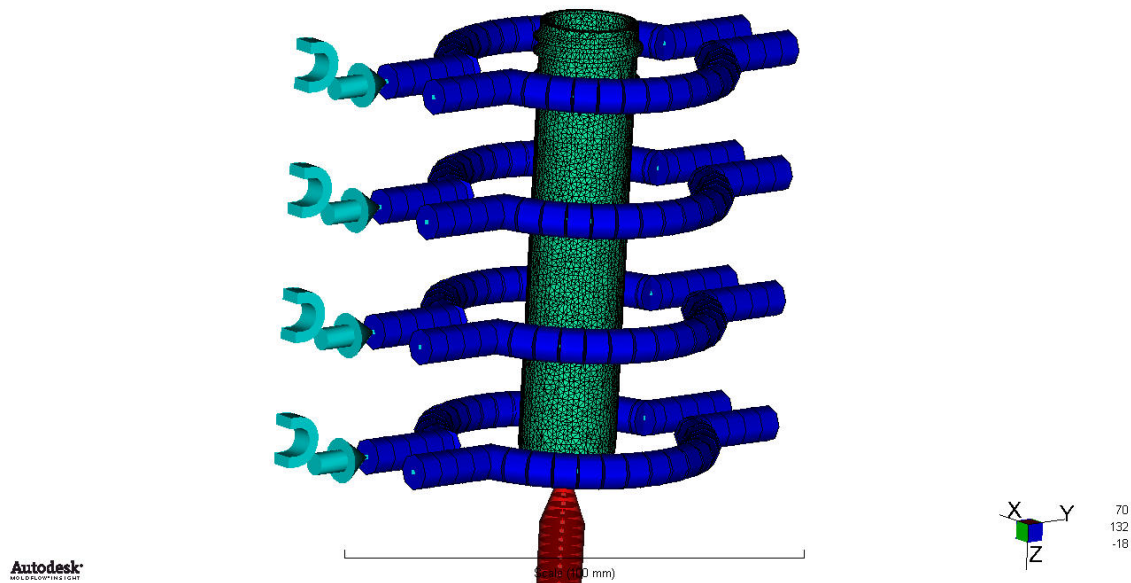


FIGURE 3.1 – Géométries préforme et canaux de régulation modélisées sous Moldflow

été conçu afin de permettre, avec un encombrement ne dépassant pas celui d'un moule standard, l'enchaînement des phases suivantes :

1. l'injection de la préforme dans le poste d'injection ;
2. maintien et refroidissement de la préforme dans le poste d'injection ;
3. 1<sup>ère</sup> ouverture du moule et transfert de la préforme du poste d'injection au poste de soufflage par rotation de la base tournante ;
4. soufflage de la préforme ;
5. 2<sup>ème</sup> ouverture du moule et éjection de la pièce finale ;

Bien que la phase d'injection puisse être simulée à travers le logiciel de calcul par éléments finis MOLDFLOW, les présents travaux se proposent de simuler la phase de soufflage seule. Les contraintes résiduelles présentes dans la préforme à la fin de la phase d'injection ne sont pas considérées. Le champ de température initial du modèle, correspondant donc au champ de température à la fin du remplissage de l'empreinte de la préforme en phase d'injection, est considéré uniforme et égal à 240°C.

L'empreinte du moule d'injection et les circuits de régulation thermique correspondants ont été modélisés et maillés via le logiciel commercial Moldflow (voir **figure 3.1**). La phase d'injection a été simulée.

Les résultats de cette simulation (**figure 3.2** et **figure 3.3**) montrent que la température de la matière n'évolue que très peu dans l'épaisseur durant le remplissage de l'empreinte, et considérer que la préforme est à 240°C avant le maintien et le refroidissement n'est pas aberrant. Les écarts aux limites étant rattrapés aux premiers instants du calcul thermique de la phase de maintien et de refroidissement.

**Remarque :** Les écarts de températures dans le moule ont été évalués à l'aide du logiciel MOLDFLOW. Pour le premier cycle, ces écarts sont de 78°C. Il faut attendre 15 cycles pour que cet écart soit inférieur à 1°C, tandis que passé 75 cycles, il est alors à 0.19°C.

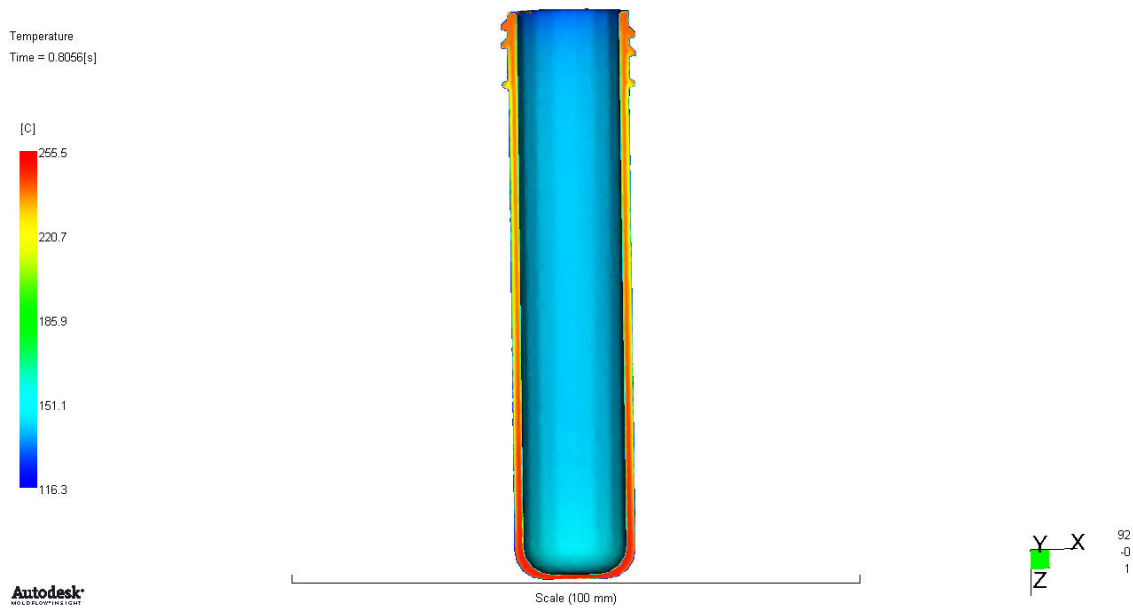


FIGURE 3.2 – Champ de température en fin de remplissage - Simulation Moldflow 3D -  $t_{\text{remplissage}} = 0.8063\text{s}$

La phase de maintien et de refroidissement est représentée par un calcul de conduction pure, avec une température imposée à l'intérieur de la préforme égale à la température du noyau et une température imposée à l'extérieur de la préforme égale à la température du moule. La phase d'ouverture est également simulée via un calcul de thermique pure mais la condition de température imposée à l'extérieur est remplacée par une condition de flux de chaleur représentant l'échange de chaleur avec l'air ambiant. Finalement, la phase de soufflage est simulée. La **figure 3.4** illustre les différentes parties de la modélisation du procédé.

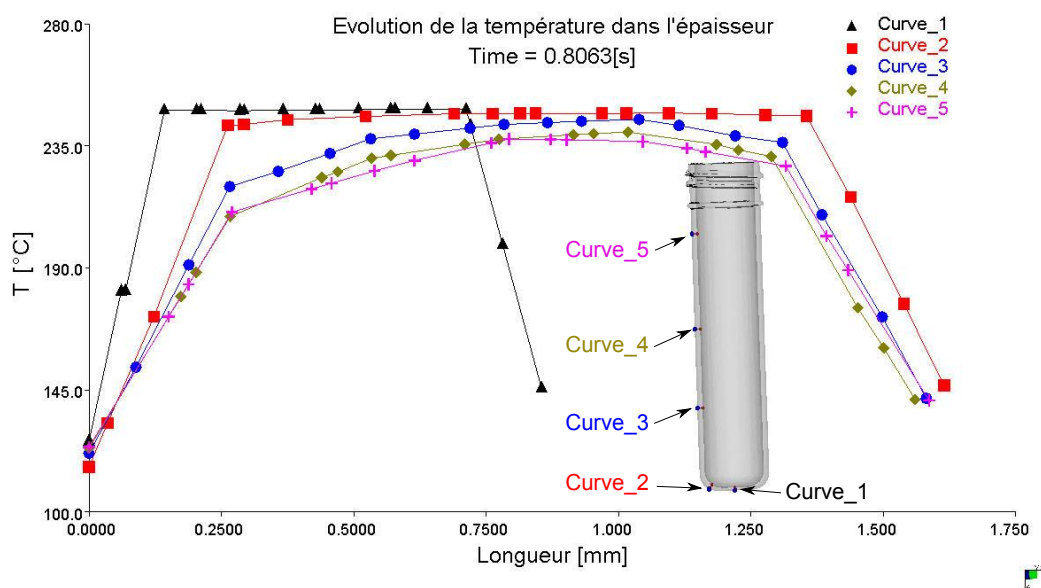


FIGURE 3.3 – Évolution de la température dans l'épaisseur de la préforme en fin de remplissage - Simulation Moldflow 3D -  $t_{\text{remplissage}} = 0.8063\text{s}$

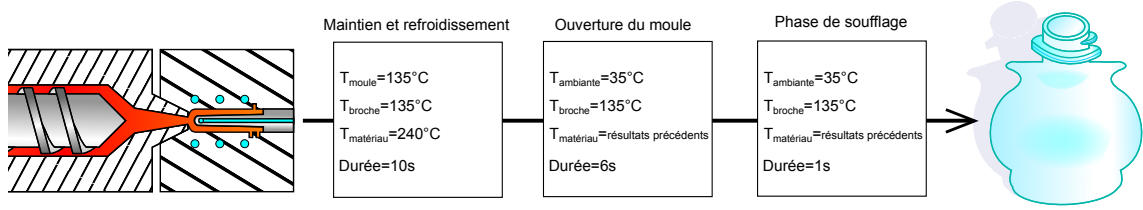


FIGURE 3.4 – Les trois étapes de la simulation numérique du procédé IBMSS

Lors de la phase d'ouverture et de déplacement de la préforme du poste d'injection au poste de soufflage, les échanges de calories avec l'air peuvent s'apparenter à de la convection forcée. En considérant que la préforme est un cylindre, le mouvement de rotation du moule lors du transport de la préforme entraîne un écoulement d'air sur cette dernière. Les travaux de **Kitamura et collab. (2007)** ont permis de dimensionner le coefficient d'échange utilisé dans le modèle. La vitesse d'écoulement de l'air lors de cette phase est estimée à  $6.6\text{cm.s}^{-1}$ . Un cylindre de 25mm de rayon (approximation de la préforme pot de yaourt) présente alors un nombre Reynolds de 240, le coefficient d'échange maximum est alors d'environ  $14\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$  à l'incidence  $0^{\circ}$  et un coefficient d'échange de  $8\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$  environ sur la face non exposée. Les échanges thermiques à incidence nulle sont donc légèrement plus élevés qu'en convection naturelle, tandis qu'ils sont légèrement inférieurs sur la face opposée. L'effet de la rotation du moule sur les échanges thermiques est donc minime et il a été choisi de prendre un coefficient d'échange correspondant à de la convection naturelle, soit  $10\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ .

**Remarque :** lors de l'étape de soufflage, les conditions limites thermiques peuvent être définies comme des flux de chaleur nuls. Le nombre de Fourier  $F_o = \frac{\alpha t}{e^2}$ , avec  $t$  le temps du procédé égal à 0.2s,  $\alpha$  la diffusivité thermique égale à  $\frac{k}{\rho c_p}$ . Avec  $\rho$  la masse volumique égale à  $0.75\text{kg.m}^{-3}$ ,  $k$  la conductivité thermique égale à  $0.17\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $c_p$  la capacité calorifique égale à  $2.70 \cdot 10^3 \text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Ces valeurs correspondent au PPR3221 à l'état fondu et sont également les valeurs renseignées dans le modèle numérique. Ceci conduit à un  $\alpha$  égal à  $0.84 \cdot 10^{-9} \text{m}^2.\text{s}^{-1}$  et en prenant  $e$  l'épaisseur maximum de la pièce finale égale à 1.7mm, le nombre de Fourier est alors inférieur à  $6 \cdot 10^{-3}$ . Cette faible valeur indique que très peu d'échanges de chaleur sont possibles durant ces 2 dixièmes de seconde. Les résultats de simulations numériques valident cette conclusion : une simulation sans flux de chaleur lors de la phase de soufflage, et la même simulation mais reprenant les conditions limites thermiques de la phase 2 du modèle, présentent les mêmes résultats en terme d'épaisseur avec un écart moyen de 0.8%.

La première étape du modèle numérique, c'est-à-dire les phase de refroidissement et compactage dans le moule d'injection, devrait être remplacée par une simulation complète avec le logiciel MOLDFLOW. Cela permettrait alors d'avoir une meilleure connaissance du champ de température initial qui serait alors importé dans la seconde phase du présent modèle numérique. Toutefois, obtenir par simulation numérique le champ de température 3D exacte de la préforme avant soufflage se présente comme une tâche considérablement ardue. Les échanges thermiques s'opérant lors de la première ouverture du moule et rotation de la base tournante ne sont pas correctement identifiés. De plus, la technologie du projet IS<sup>2</sup> se des-

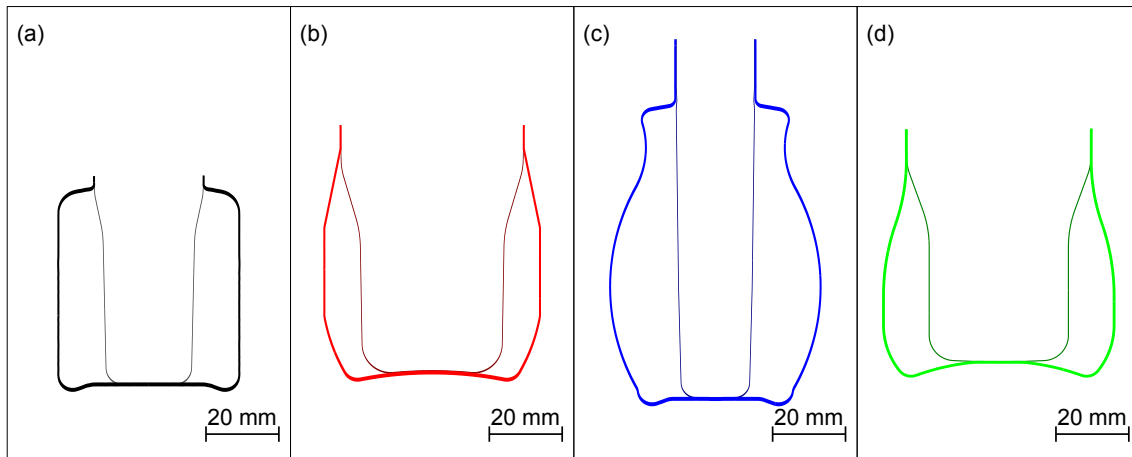


FIGURE 3.5 – les différentes géométrie étudiées : (a) Pilulier : hauteur moyenne= 60mm et diamètre moyen final= 50mm - (b) Pot de yaourt prototype : hauteur moyenne= 80mm et diamètre moyen final= 60mm - (c) Flacon : hauteur moyenne= 100mm et diamètre moyen final= 40mm - (d) Pot de yaourt bi-étage : hauteur moyenne= 80mm et diamètre moyen final= 60mm

tine à des petites productions. Il n'est pas sûr que les productions durent suffisamment longtemps pour que le moule de la pièce flacon atteigne un régime thermique stationnaire. La simulation Moldflow estime qu'il faudrait attendre 69 cycles pour que le moule soit à température quasi-homogène, avec un gradient de température inférieur à  $0.2^{\circ}\text{C}$ . Pour des productions inférieures à une quinzaine de cycles, comme c'est le cas lors de mises au point, une approche 3D est inévitable afin de prendre en compte le gradient de température dans le moule impactant directement le champ de température de la préforme. Et bien que la géométrie de cette dernière présente une symétrie de révolution, il n'en va pas de même pour le champ de température.

### 3.1.3 Géométrie et maillage

Dans le projet  $IS^2$ , quatre géométries sont étudiées :

- pilulier : géométrie pilulier mono-empreinte utilisée sur le moule prototype ;
- pot de yaourt prototype : géométrie pot de yaourt mono-empreinte utilisée sur le moule prototype ;
- flacon prototype : géométrie flacon double empreinte utilisée sur le moule prototype ;
- pot de yaourt bi-étage : géométrie pot de yaourt sur moule bi-étage destinée à la production en série ;

Ces géométries sont présentées dans la **figure 3.5**.

La **figure 3.6** représente la géométrie flacon du problème et présente les différents domaines et limites, avec les conditions imposées sur celles-ci dans le modèle numérique. Deux domaines sont définis : le moule et la préforme. Le principe du modèle numérique est identique pour les géométries pot de yaourt.

Pour le moule, deux limites sont définies : le bord de contact, correspondant à l'intérieur du moule, et les autres bords n'intervenant pas dans le calcul.

Pour la préforme, quatre limites sont définies :

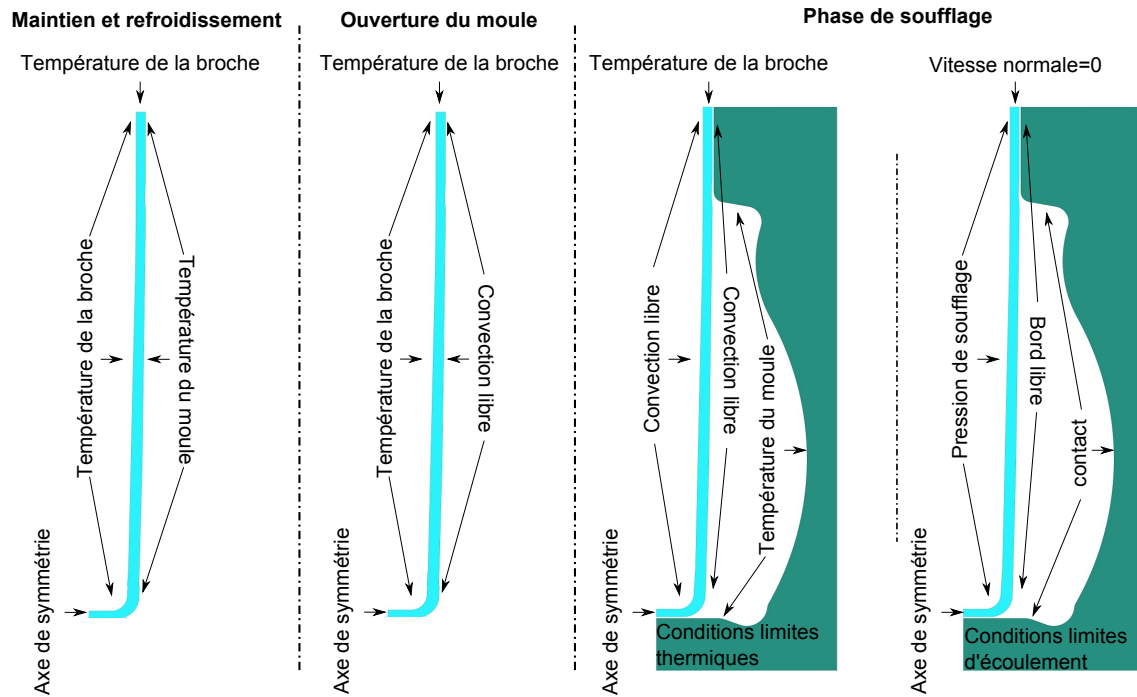


FIGURE 3.6 – géométrie 2D du problème et les conditions imposées à chaque étape de la simulation numérique

- le bord extérieur, qui entrera en contact avec le moule ;
- le bord intérieur, où la pression de soufflage est imposée ;
- le bord supérieur, où une condition de vitesse normale nulle et de force tangentielle nulle est imposée (glissement parfait) ;
- le bord restant, représentant l'axe de symétrie du problème ;

Le maillage de la préforme est composé d'éléments quadrangles. Le bord du moule où le problème de contact prend place est maillé finement afin de ne pas porter préjudice à la détection de la préforme. Le maillage représente un total de 6827 nœuds pour 6084 faces.

La **figure 3.7** présente la géométrie maillée, ainsi qu'un zoom sur la partie basse de la préforme. La régularité du maillage de la préforme est une nécessité, comme il sera expliqué plus loin.

### 3.1.4 Méthode de résolution par éléments finis

Le logiciel utilisé est le logiciel POLYFLOW, un code de calcul de dynamique des fluides par éléments finis, dédié à la résolution des problèmes d'écoulements faisant intervenir des fluides visqueux et/ou viscoélastiques. POLYFLOW utilise une approche Eulérienne avec les champs de vitesse et de pression comme inconnues du problème. À ces inconnues doivent être ajoutée la position de la surface libre bordant l'écoulement dans le cas d'une simulation de soufflage.

Le traitement des problèmes d'écoulements repose sur la résolution des équations découlant des principes de conservation :

- Conservation de la masse :

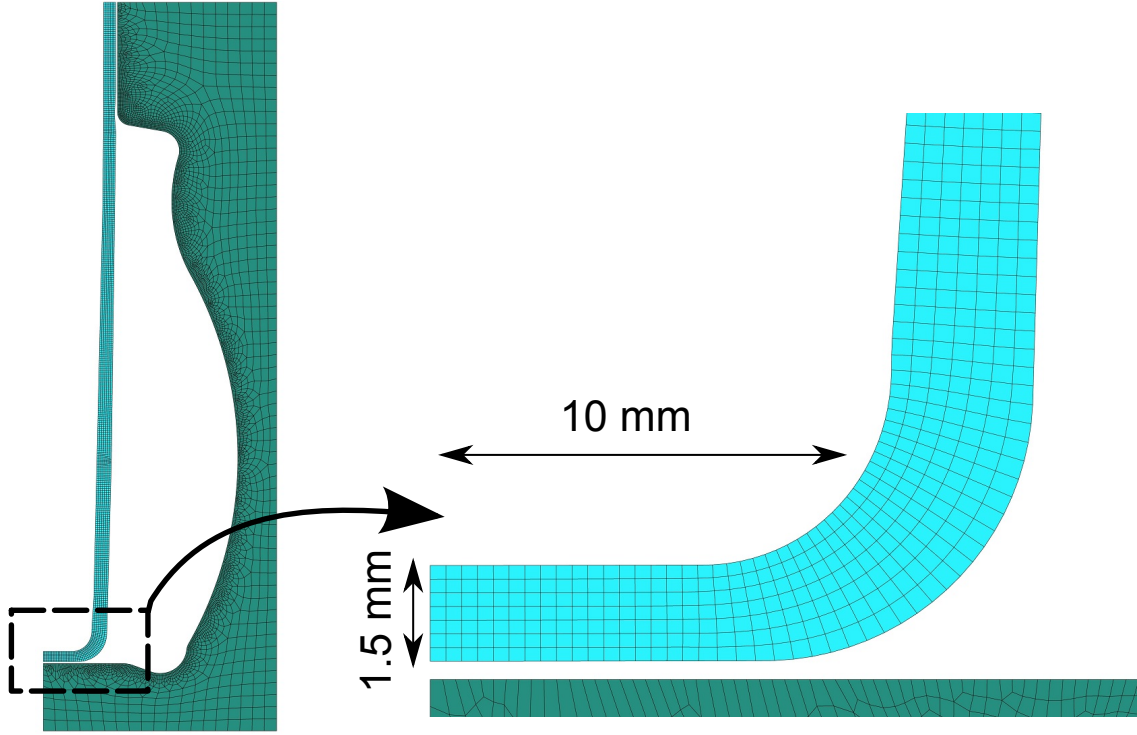


FIGURE 3.7 – Géométrie maillée

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot (\rho \vec{v}) = 0 \quad (3.1)$$

avec  $\vec{v}$  le champ de vitesse dans le fluide et  $\rho$  la masse volumique du fluide.

— Conservation de la quantité de mouvement :

$$\vec{\nabla} \cdot \underline{\underline{\sigma}} = \rho \left( \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} + \vec{\nabla} \vec{v} \cdot \vec{v} \right) \quad (3.2)$$

$$\underline{\underline{\sigma}} = -P \underline{\underline{I_d}} + \underline{\underline{S}} \quad (3.3)$$

avec  $\underline{\underline{\sigma}}$  le tenseur total des contraintes,  $P$  la pression dans l'écoulement,  $\underline{\underline{I_d}}$  le tenseur identité et  $\underline{\underline{S}}$  le tenseur des “contraintes visqueuses”, ou encore “tenseur des extra-contraintes”. Ce dernier est défini par la loi de comportement utilisée, de manière implicite ou explicite selon la loi gouvernant le comportement du matériau.

La loi de comportement relie ces “extra-contraintes” à une mesure des déformations. Dans le cas d'un fluide Newtonien, la relation est la suivante :

$$\underline{\underline{S}} = \eta \left( \nabla \vec{v} + (\nabla \vec{v})^t \right) = 2\eta \underline{\underline{D}} \quad (3.4)$$

avec  $\underline{\underline{D}}$  le tenseur des vitesses de déformation et  $\eta$  la viscosité du matériau. Cette viscosité peut être indépendante de la sollicitation pour un cas purement Newtonien, ou bien évoluer avec le taux de déformation pour un cas Newtonien généralisé et suivre, par exemple, une loi rhéofluidifiante.

La relation entre “extra-contraintes” et déformation n’est pas toujours linéaire. Des modèles non-linéaires doivent alors être utilisés, venant rendre moins évidente la convergence du problème global.

Par exemple, le modèle viscoélastique différentiel de Maxwell repose sur l’équation suivante :

$$\underline{\underline{S}} + \lambda \frac{\nabla}{\underline{\underline{S}}} = 2\eta \underline{\underline{D}} \quad (3.5)$$

Ou bien encore, un modèle viscoélastique intégral peut être utilisé. Par exemple, le modèle de Wagner :

$$\underline{\underline{S}}(t) = \int_{-\infty}^t m(t-t') h(I_1, I_2) \underline{\underline{C}}_t^{-1}(t') dt' \quad (3.6)$$

- Finalement, la thermodynamique donne les équations de conservation de la chaleur et une relation d’état entre la masse volumique et la pression  $\rho = f(P)$

$$\rho C_p \left( \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \vec{T} \cdot \vec{v} \right) - \beta T \left( \frac{\partial P}{\partial t} + \nabla \vec{P} \cdot \vec{v} \right) = \underline{\underline{S}} : \underline{\underline{D}} + \vec{\nabla} \cdot (k \nabla \vec{T}) \quad (3.7)$$

avec  $\beta$  le coefficient d’expansion thermique du fluide défini par :

$$\beta = -\frac{1}{\rho} \left( \frac{\partial \rho}{\partial T} \right)_P \quad (3.8)$$

Selon les configurations choisies, des hypothèses sont faites afin de simplifier les équations précédentes. Dans la modélisation choisie pour simuler le procédé IBMSS, les hypothèses suivantes sont faites :

- incompressibilité :  $\rho$  constant ;
- fluide fortement visqueux : terme d’inertie  $\nabla \vec{v} \cdot \vec{v}$  négligé dans **3.2** ;

Afin de résoudre ces équations, des conditions limites sont à définir sur les limites du problème. Deux types de conditions limites peuvent être imposées pour l’identification des inconnues de vitesses et de pression :

- la vitesse  $\vec{v}$  est connue : condition de Dirichlet ;
- les efforts  $\vec{f} = \underline{\underline{\sigma}} \cdot \vec{n}$  sont connus : condition de Neumann ;

Dans le cas où le problème introduit une surface libre, cette dernière implique un nouveau couple de conditions sur la vitesse et sur les contraintes : la vitesse normale à la surface est nulle et les efforts normaux sont connus.

Un problème de surface libre implique toujours un certain degré de remaillage, comme le maillage représentant la préforme est soumis à de grandes déformations. Les déformations sont majoritairement extensionnelles, mais il est possible qu’une partie de ces déformations soit du cisaillement.

La méthode de remaillage choisie est la méthode “Thin Shell with Lagrangian Master” **ANSYS (2010)**, qui est préconisée pour les simulations de soufflage. Cette méthode est disponible uniquement pour les calculs 2D. L’objectif est de conserver une forme convenable pour les éléments du maillage. L’angle des mailles ne doit pas

passer en dessous d'un certain seuil pour éviter que la maille ne s'aplatisse, l'idéal étant que les angles soient les plus proches possibles de 90°. Les longueurs des arêtes ne doivent pas être trop différentes pour éviter que la maille ne tende plus vers une direction qu'une autre. Un déplacement Lagrangien est imposé aux nœuds du bord impliqué dans le problème de contact. Ce bord est appelé "Surface maître". Les nœuds restants dans l'épaisseur sont relocalisés suivant une méthode directrice (*spine method*), décrite dans **ANSYS (2010)**. La "Surface maître" est remaillée dans la direction tangentielle avec comme contrainte de conserver une distribution d'éléments convenable. Les nœuds dans l'épaisseur sont ensuite répartis le long de directrices définies normales à la "Surface maître". Cette méthode est robuste, même en présence de cisaillement. Une telle méthode nécessite un maillage structuré, avec le même nombre de nœuds le long des bords intérieurs et extérieurs de la préforme, afin que la méthode directrice puisse être utilisée.

Comme définie dans **ANSYS (2010)**, le contact avec le moule est détecté en utilisant une procédure locale à chaque localisation de la surface libre. L'utilisation de la méthode Lagrangienne dans le remaillage facilite la détection du contact, car elle permet aux nœuds de suivre la déformation physique. Le contact n'en est que plus réaliste. La procédure de contact consiste à tester la pénétration de chaque nœud dans le domaine du moule. Si la distance de pénétration est supérieure à la tolérance imposée, l'incrément temporel est diminué et les déplacements sont réévalués. Une fois qu'un nœud pénètre le domaine moule d'une distance inférieure à la tolérance imposée, l'équation discrète de conservation de mouvement du nœud est modifiée et augmentée d'un terme de pénalité, qui peut être différent dans la direction normale et dans la direction tangentielle, permettant un glissement par exemple. Dans la direction normale, ce coefficient de pénalité est défini suffisamment grand pour que la vitesse du nœud tende vers la vitesse de la paroi avec laquelle il est entré en contact, c'est-à-dire une vitesse nulle en l'occurrence.

$$f_n = -k(\vec{v} - v_{\text{wall}}) \cdot \vec{n} \quad (3.9)$$

avec  $\vec{n}$  le vecteur unitaire normal à la surface,  $k$  le coefficient de pénalité,  $v_{\text{wall}}$  le vecteur vitesse de la paroi et  $\vec{v}$  le vecteur vitesse du nœud.

Dans la direction tangentielle, la méthode est similaire, permettant l'application d'un glissement, ce qui se rapprocherait de la réalité selon les cas.

$$f_t = -F_{\text{slip}}(v_s - v_{s,\text{wall}}) \quad (3.10)$$

avec  $F_{\text{slip}}$  le coefficient de frottement,  $v_{s,\text{wall}}$  la vitesse tangentielle et  $v$  la vitesse tangentielle du nœud.

$F_{\text{slip}}$  et  $k$  ont des dimensions physiques :  $\text{g.s}^{-1}$ . Une valeur typique dans le cas de calcul dans un milieu composé d'air est  $10^9 \text{ g.s}^{-1}$ . Le glissement est permis quand  $F_{\text{slip}}$  est inférieur à  $k$ . Une valeur égale à  $k$  correspond à un cas de non-glissement, ce qui est considéré dans la présente étude.

Le calcul est lancé sur une station de travail HP Z820 Bi Xeon E5 2687 256GB sous 4 processeurs et le temps de calcul est d'environ une heure.



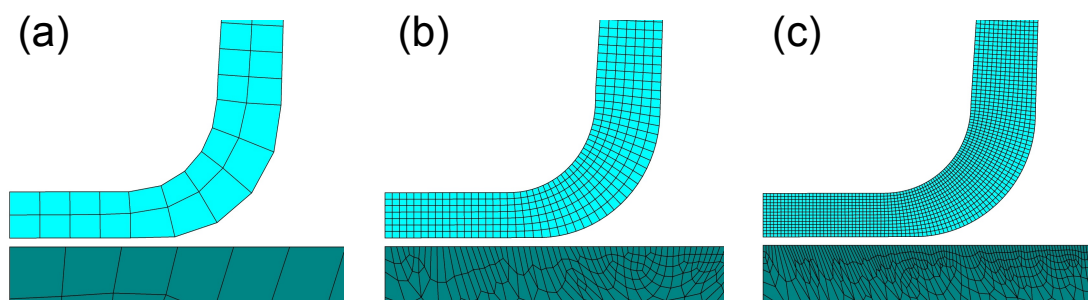


FIGURE 3.8 – Sensibilité maillage : (a) maillage grossier - (b) maillage standard - (c) maillage fin

## 3.2 Étude de sensibilité du modèle

### 3.2.1 Effet du maillage

Trois maillages sont réalisés sur la géométrie flacon afin de tester l'influence de ce paramètre sur les résultats de la simulation. La matière choisie est le PPR3221. La **figure 3.8** montre les trois maillages.

Le **tableau 3.1** présente les caractéristiques des différents maillages.

TABLE 3.1 – Paramètre des différents maillages :

	cas (a)	cas (b)	cas (c)
Taille de maille le long du bord du moule [mm]	2	0.2	0.1
Nombre de divisions dans l'épaisseur	2	7	14
Taille de maille dans la hauteur de la préforme [mm]	1	0.3	0.15
Nombre de divisions dans le coude	5	26	52
Nombre de divisions dans le fond	4	17	34
Nombre de nœuds total	834	6827	18556
Nombre d'éléments total	635	6084	17128
Temps de calcul phase 1 [s]	8.0	20.0	100.0
Temps de calcul phase 2 [s]	6.0	19.0	52.0
Temps de calcul phase 3 [s]	673.0	4710.0	45031.0

La **figure 3.9** représente les répartitions d'épaisseur finales pour chaque maillage après remplissage du moule. Il apparaît clairement qu'un maillage grossier n'offre pas une solution correcte. Le maillage fin et le maillage standard présentent des solutions très proches. Le maillage standard offre donc une solution stable pour un temps de calcul correct, en comparaison du maillage fin.

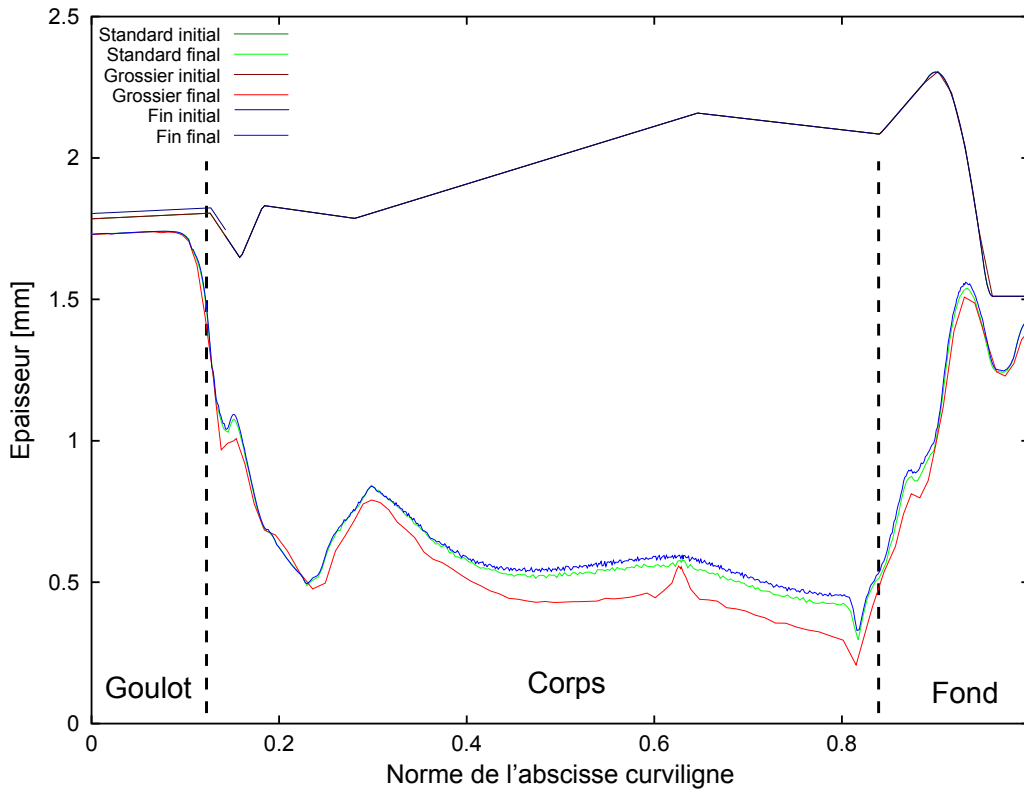


FIGURE 3.9 – Résultats sensibilité maillage : (rouge) maillage grossier - (vert) maillage standard - (bleu) maillage fin

### 3.2.2 Effet du degré d'interpolation

Dans POLYFLOW, le degré d'interpolation choisi pour les différentes inconnues à déterminer peut être modifié. Deux types d'interpolation ont été testés avec la géométrie flacon avec le matériau PPR3221 :

(Vitesse\_Pression\_Température\_Coordonnées)

-P2\_P1\_P2\_P1 ;

-P1\_P0\_P1\_P1 ;

#### Remarque :

- P2=interpolation quadratique ;
- P1=interpolation linéaire ;
- P0=interpolation constante ;

La **figure 3.10** présente le schéma des deux interpolations pour le cas d'une maille.

Le premier cas représente l'interpolation utilisée par défaut. Le deuxième cas une interpolation plus pauvre. Les temps de calcul sont résumés dans le **tableau 3.2**. Les différents calculs sont réalisés sur le maillage standard.

Les répartitions d'épaisseurs simulées sont représentées dans la **figure 3.11**.

Les temps de calcul n'étant pas significativement rallongés par l'utilisation d'éléments quadratiques, les calculs sont poursuivis avec l'interpolation P2\_P1\_P2\_P1.

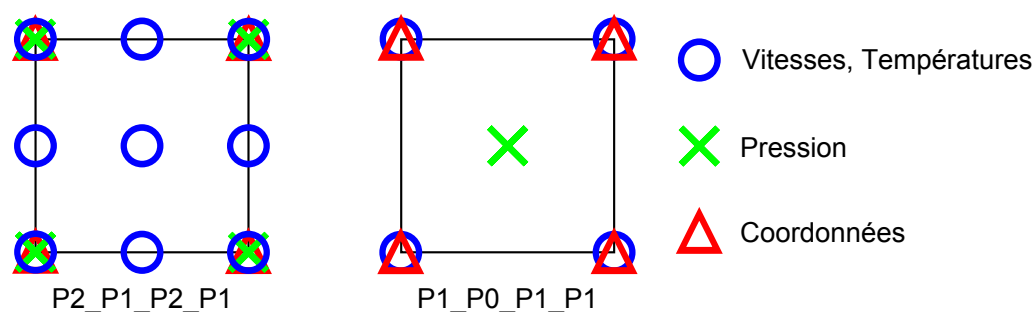


FIGURE 3.10 – schéma des différents interpolants pour le cas d'une maille

### 3.2.3 Effet du matériau choisi

Le matériau choisi intervient via la loi de comportement qui le caractérise. Afin d'illustrer cet effet, le soufflage de la géométrie flacon a été simulé. Dans un premier cas, le comportement du PPR3221 est représenté par la loi de Cross. Dans le second cas, une loi newtonienne, c'est-à-dire à viscosité constante, est choisie. Dans les deux cas, l'effet de la température est pris en compte à travers la même loi d'Arrhénius. La **figure 3.12** présente les épaisseurs initiales et finales des deux simulations. Les écarts sont évidents et illustrent le poids de la loi de comportement dans le résultat de la simulation.

L'effet de la loi de comportement est également illustré pour la géométrie pot de yaourt, aussi bien prototype (**figure 3.13**) que bi-étage (**figure 3.14**), dont le soufflage a été simulé pour les trois matières suivantes : PPR3221, MR10MX0 et

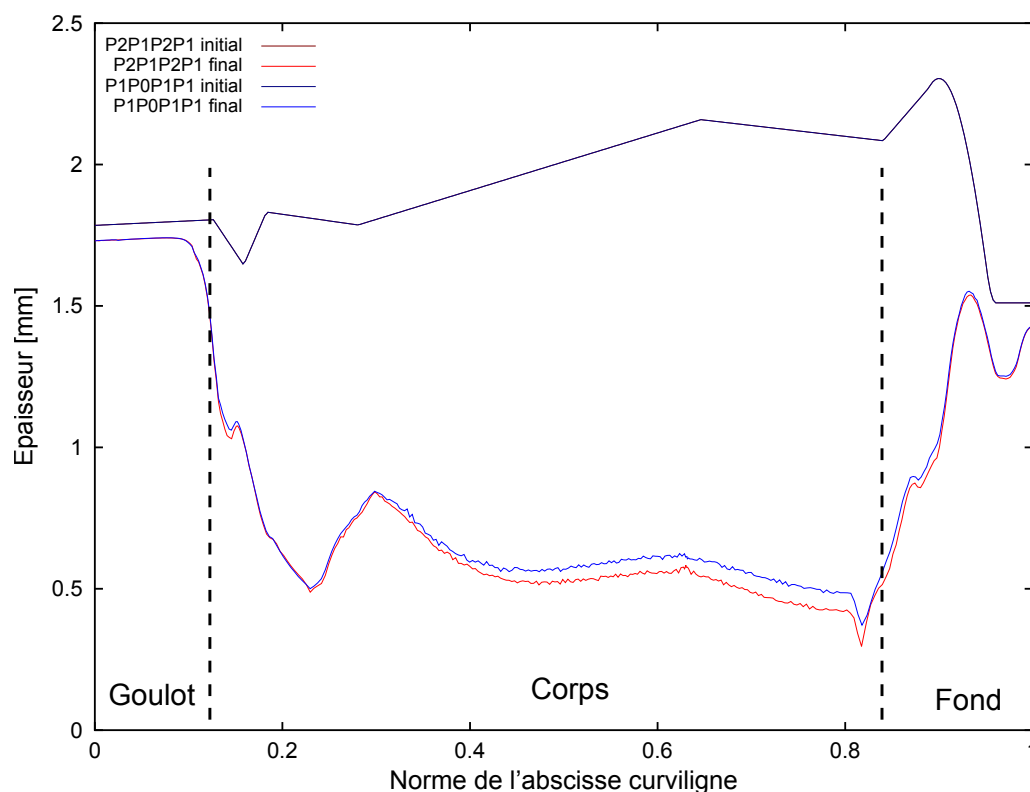


FIGURE 3.11 – Résultats sensibilité interpolation : interpolation standard (bleu) - interpolation pauvre (rouge)

TABLE 3.2 – Temps de calcul selon les interpolations :

	cas 1 : P2_P1_P2_P1	cas 2 : P1_P0_P1_P1
Temps de calcul phase 1 [s]	20.0	23.0
Temps de calcul phase 2 [s]	19.0	18.0
Temps de calcul phase 3 [s]	4710.0	4211.0

PPR10232. Le détail des lois de Cross et lois d'Arrhénius de ces trois matériaux est disponible dans le **tableau 2.6** de la **partie 2.3.3**.

Le PPR3221 et le MR10MX0 présentent des répartitions d'épaisseurs proches. Bien que plus visqueux que le MR10MX0, le PPR3221 a de plus un indice d'écoulement plus élevé que ce dernier, et est donc moins rhéofluidifiant (voir **tableau 2.6**). Le paramètre de temps de relaxation est quant à lui bien différent : celui du PPR3221 est 26 fois supérieur à celui du MR10MX0. Cela signifie que le PPR3221 commence à rhéofluidifier à des taux de cisaillement pour lesquels le MR10MX0 voit sa viscosité peu évoluer, car toujours dans le plateau newtonien (voir **figure 2.25**). Le soufflage du pot de yaourt correspondrait alors à la zone de cisaillement où les deux matériaux ont une viscosité proche : là où la viscosité du PPR3221 a déjà bien diminué du fait de son caractère rhéofluidifiant plus prononcé, tandis que la viscosité du MR10MX0 démarre juste sa rhéofluidification. Le PPR10232 présente une répartition d'épaisseurs bien différente, car son comportement rhéologique est très éloigné de celui des deux précédents polymères.

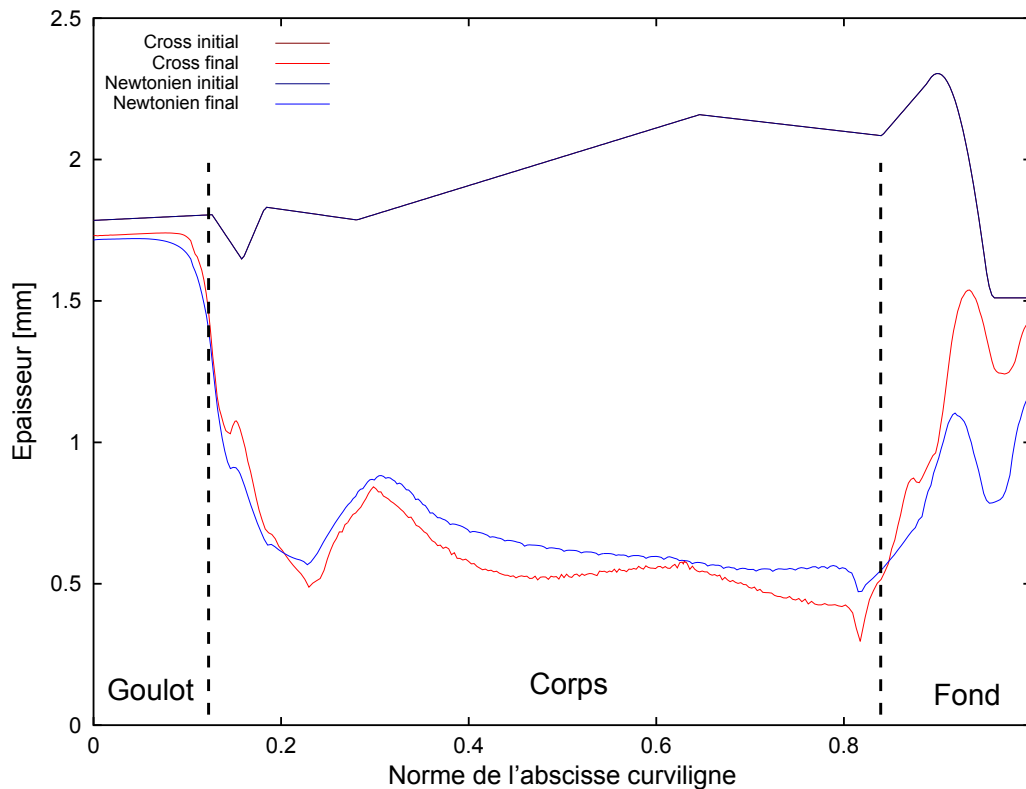


FIGURE 3.12 – Sensibilité loi de comportement - PPR3221 - cas newtonien (bleu) et cas Cross (rouge)

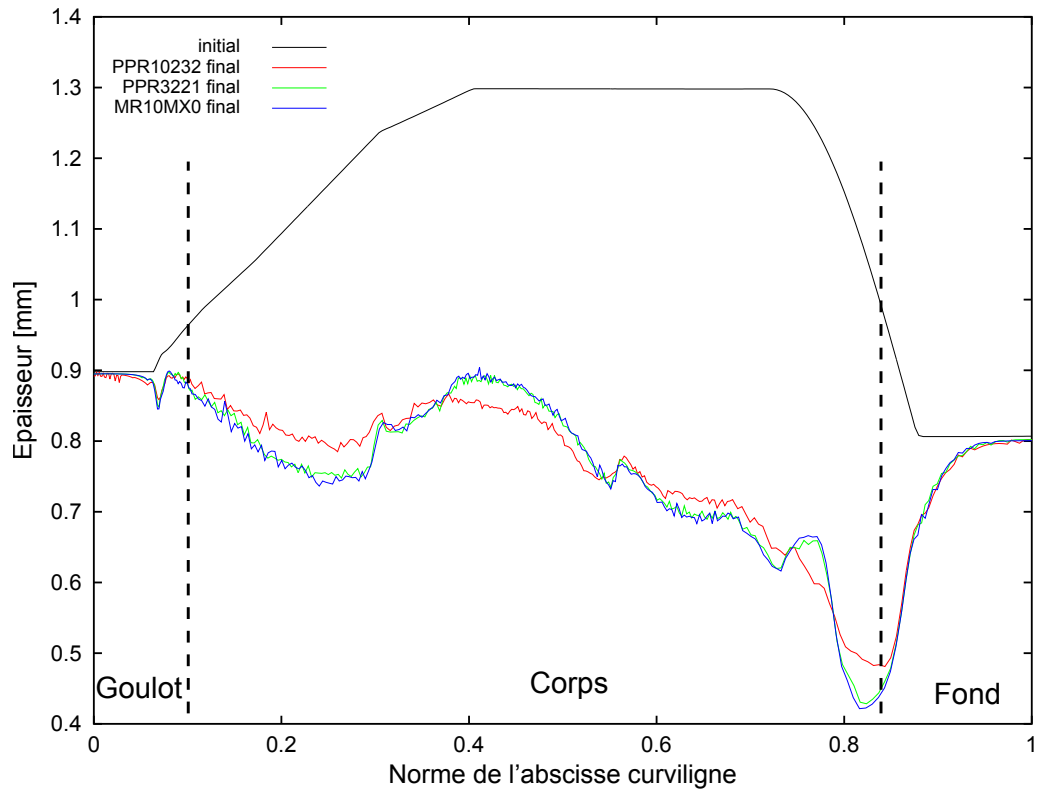


FIGURE 3.13 – Sensibilité matériau - Pot de yaourt prototype - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - PPR10232 (rouge)

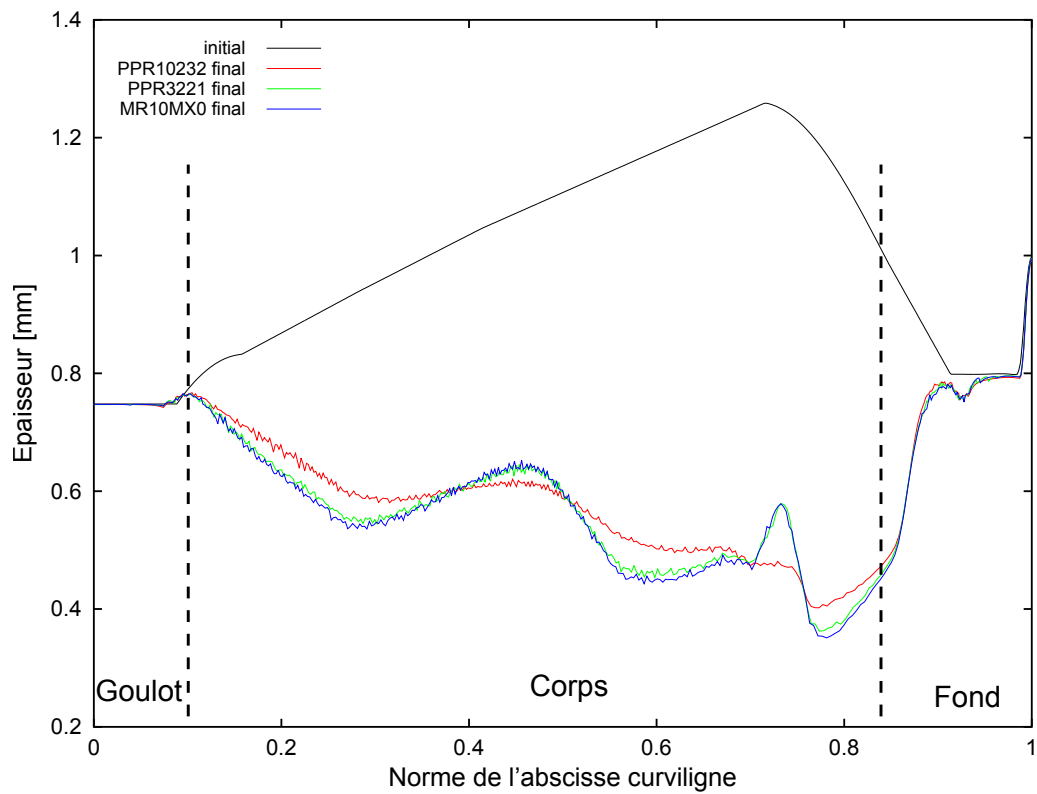


FIGURE 3.14 – Sensibilité matériau - Pot de yaourt bi-étage - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - PPR10232 (rouge)

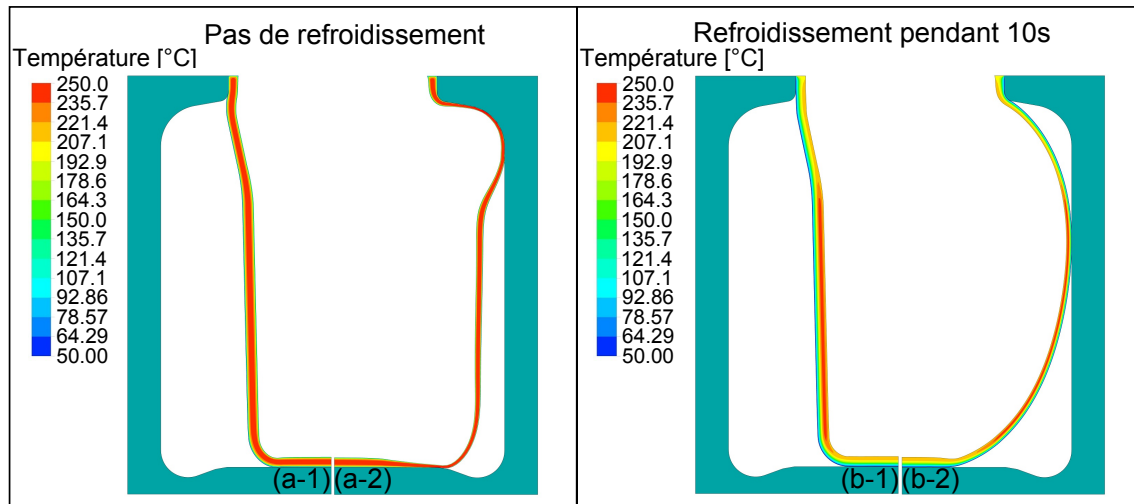


FIGURE 3.15 – Effet du champ de température initial - (a-1) état avant soufflage - Températures homogènes - (a-2) Premier contact - Températures homogènes - (b-1) état avant soufflage - Températures inhomogènes - (b-2) Premier contact - Températures inhomogènes

### 3.2.4 Effet du champ de température avant soufflage

Pour illustrer l'effet du champ de température avant soufflage, la géométrie pilulier est utilisée, car plus simple. La simulation concerne uniquement le soufflage de cette pièce. Deux simulations sont réalisées, chacune avec les mêmes conditions excepté pour le temps d'attente avant le soufflage :

- la température initiale de la matière est imposée à  $240^{\circ}\text{C}$  ;
- une température de  $105^{\circ}\text{C}$  est imposée au bord interne de la préforme ;
- une température de  $50^{\circ}\text{C}$  est imposée au bord extérieur de la préforme ;

La **figure 3.15** montre les résultats de ces calculs. Le premier cas (a) n'a pas de temps de refroidissement. Le soufflage intervient immédiatement de sorte qu'aucun gradient de température ne puisse se développer. Le second cas (b) est soufflé après dix secondes de refroidissement, afin que le champ de température initial de  $240^{\circ}\text{C}$  évolue en accord avec les températures imposées aux limites.

Il apparaît tout d'abord que la température n'évolue pas pendant le soufflage, les temps mis en jeu étant trop court pour permettre des échanges de calories.

La partie supérieure de la préforme est la plus fine. Quand le champ de température est uniforme le long de la préforme, les parties les plus fines sont étirées en premier car elles sont moins résistantes devant la pression de soufflage. Cependant, lorsque le champ de température présente des gradients le long de la préforme, l'épaisseur locale n'est plus le seul paramètre gouvernant l'évolution du soufflage de la préforme. La température locale compte, à travers la dépendance thermique de la viscosité. La résistance locale est liée à l'épaisseur locale et à la viscosité locale. Le cas (b) montre un étirage quasi-uniforme, du fait que la partie la plus fine est plus froide et la partie la plus épaisse est plus chaude et donc plus fluide. Ce résultat contre intuitif est un rappel direct des spécificités du procédé d'injection-soufflage cycle chaud.

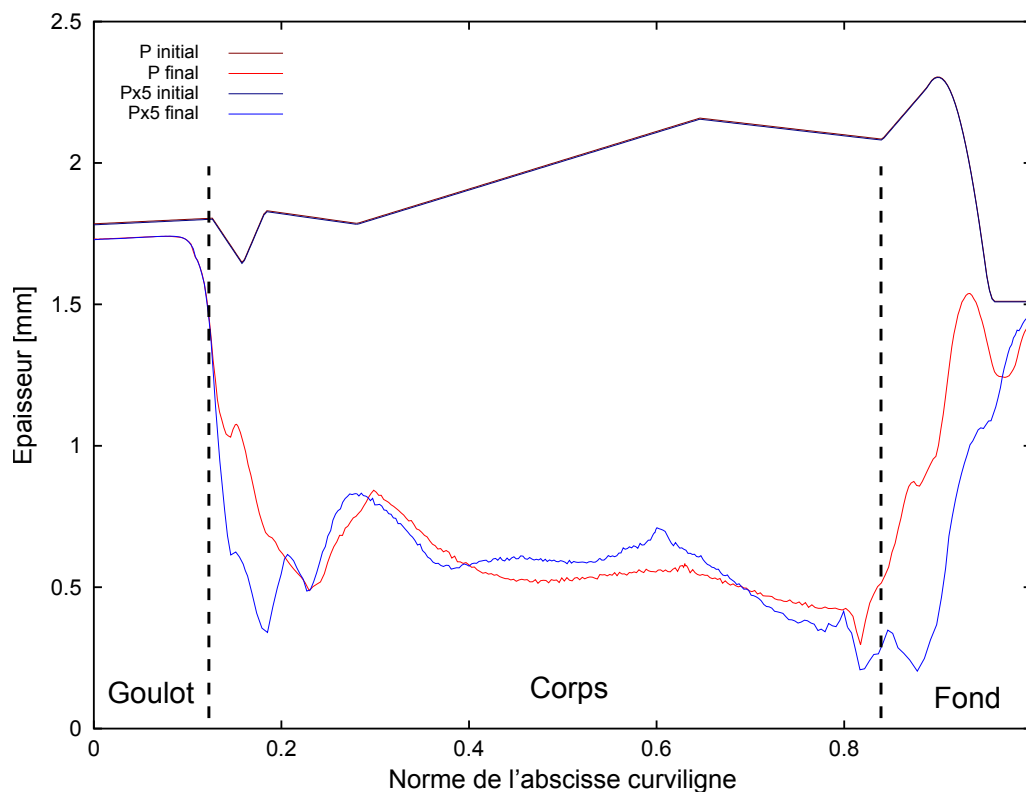


FIGURE 3.16 – Effet de la pression imposée sur le modèle de Cross :  $P=2.5\text{bar}$  (rouge) -  $P=12.5\text{bar}$  (bleu)

### 3.2.5 Effet de la pression de soufflage imposée

La pression de soufflage a également un impact sur la simulation du procédé. Plus la pression est grande, plus la préforme est déformée vite. La loi de comportement étant sensible aux taux de déformation, la répartition d'épaisseurs finale en est impactée.

Pour illustrer cette spécificité, le soufflage du flacon avec une pression de  $2.5\text{bar}$  est comparé au même cas mais avec une pression de soufflage cinq fois plus grande, soit  $12.5\text{ bar}$ . Ceci a été réalisé pour la loi de Cross (**figure 3.16**) du PPR3221 et pour la loi newtonienne (**figure 3.17**).

Une pression cinq fois plus importante n'a pas d'effet sur la répartition d'épaisseurs de la loi à viscosité constante.

Une pression évolutive, plus proche de la réalité du procédé, est ensuite comparée à la pression constante de  $2.5\text{bar}$ . En effet, au cours du procédé, le volume disponible, c'est-à-dire encapsulé par la préforme, augmente. Avant la déformation de la préforme, la pression va augmenter car la quantité d'air augmente dans un volume fixe, le volume initial. Une fois la déformation amorcée, le volume évolue et la pression va cesser d'augmenter, voire chuter, selon le rapport entre le débit d'air en entrée et la vitesse d'augmentation du volume. Une fois le volume fixé, la pression va à nouveau augmenter car la quantité augmente à volume fixe jusqu'à arriver à saturation du système, c'est-à-dire l'énergie fournie par la pompe n'est plus suffisante pour comprimer plus en avant l'air dans la préforme.

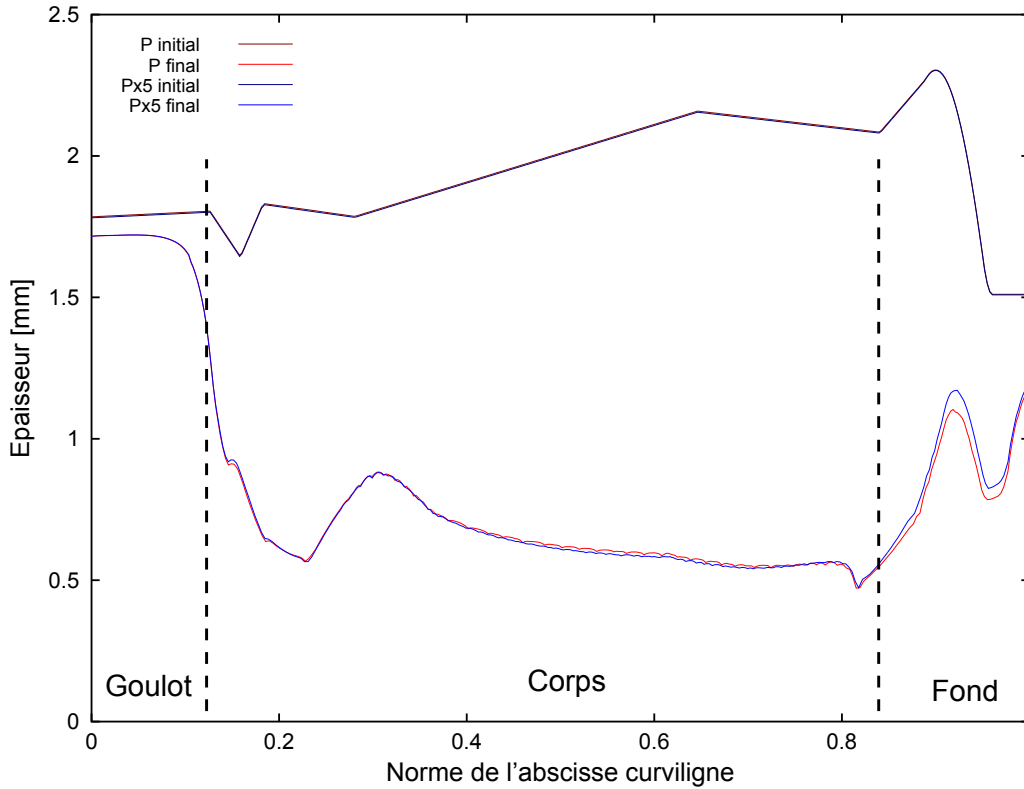


FIGURE 3.17 – Effet de la pression imposée sur le modèle newtonien :  $P=2.5\text{bar}$  (rouge) -  $P=12.5\text{bar}$  (bleu)

La pression évolutive suit la loi suivante, déduite de la loi des gaz parfaits :

$$\Delta P = P(t) - P_0 = \frac{P_0 V_0 + \dot{n} t R T_{air}}{V(t)} - P_0 \quad (3.11)$$

avec  $P(t)$  la valeur de la pression à l'instant  $t$ ,  $P_0$  la valeur de la pression initiale,  $V_0$  le volume initial encapsulé par la préforme,  $V(t)$  le volume encapsulé par la préforme à l'instant  $t$ ,  $\dot{n}$  le débit molaire du flux d'air,  $R$  la constante des gaz,  $T_{air}$  la température de l'air.

L'évolution de la pression pour les premiers instants de la phase de soufflage est représentée dans la **figure 3.18** et a été calculée sur un cylindre en soufflage libre, équivalent à la préforme.

De même, la pression évolutive a été imposée au modèle de Cross (**figure 3.19**) et au modèle newtonien (**figure 3.20**).

Les épaisseurs pour le modèle de Cross sont bien plus sensibles à la pression évolutive que le modèle newtonien. Il est à noter que les écarts concernant le modèle newtonien en fond de bouteille sont étonnants et sont sûrement dus au schéma temporel utilisé. Ou bien ces écarts s'expliquent par un problème de contact mal dimensionné, permettant à la préforme de s'enfoncer dans le domaine moule malgré contact. La pression constante étant plus violente que la pression évolutive, elle pousse plus en avant la préforme dans le moule que la pression évolutive, d'où des épaisseurs plus faibles. Mais cette dernière explication ne tient pas au regard du graphique **3.17**, où la préforme soufflée avec  $2.5\text{bar}$  de pression est plus fine au fond



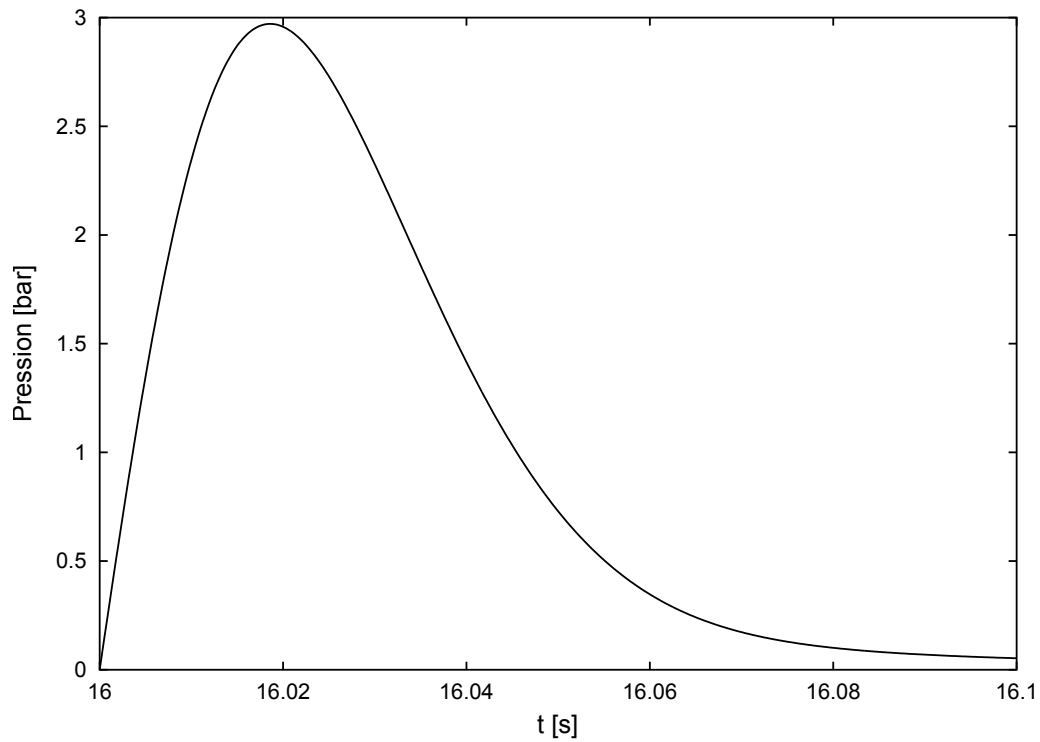


FIGURE 3.18 – Évolution de la pression durant la phase de soufflage

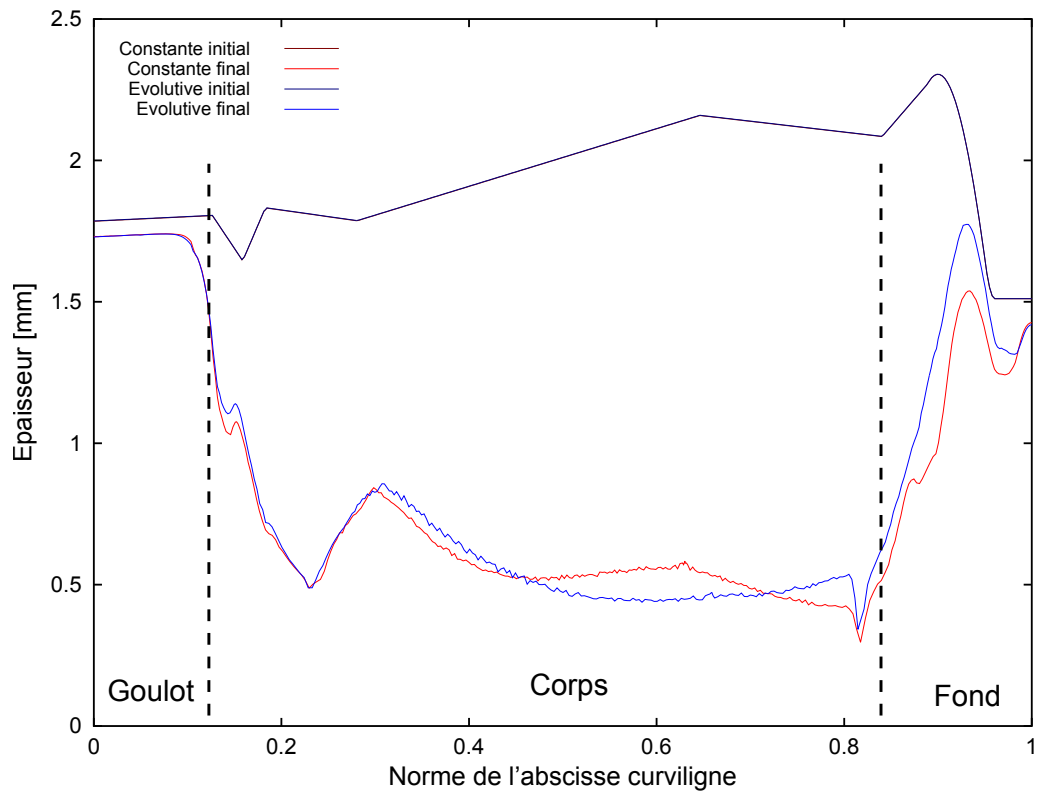


FIGURE 3.19 – Effet de la pression imposée sur le modèle de Cross : Pression constante (rouge) - Pression évolutive (bleu)

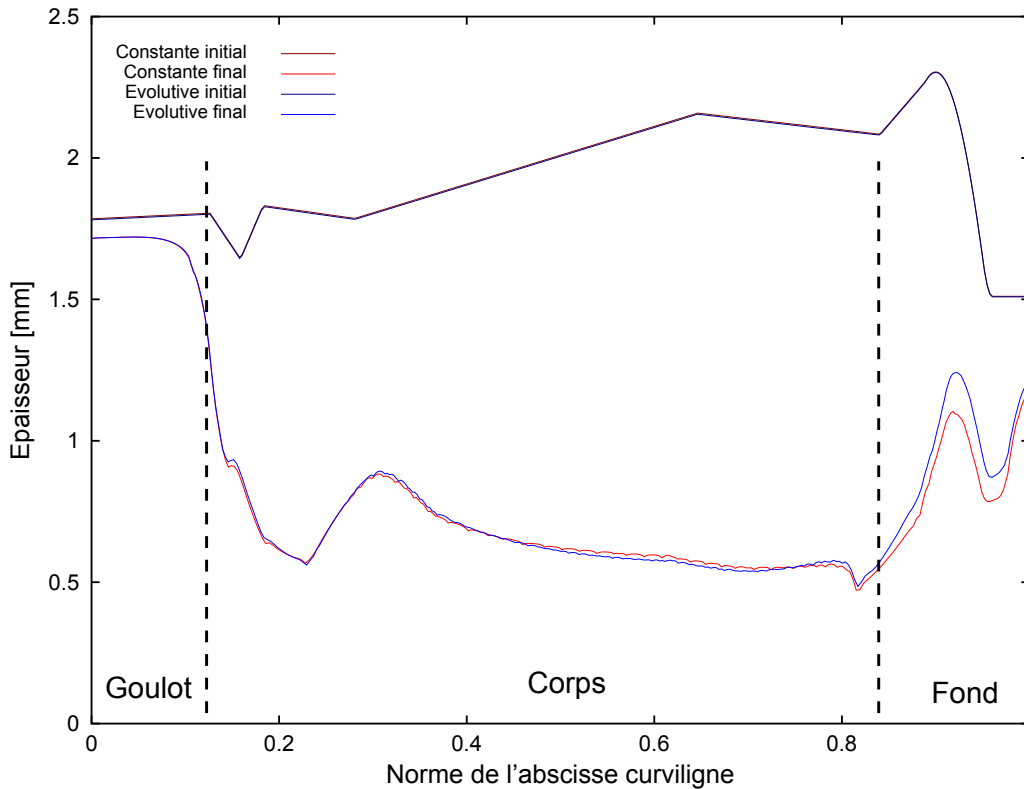


FIGURE 3.20 – Effet de la pression imposée sur le modèle newtonien : Pression constante (rouge) - Pression évolutive (bleu)

de bouteille que celle soufflée avec une pression cinq fois plus forte, bien que la différence soit faible.

Les **figures 3.21, 3.22 et 3.23** montrent l'évolution de la préforme au cours du soufflage dans le cas du modèle de Cross à pression constante, du modèle de Cross à pression variable et du modèle newtonien à pression variable.

Les viscosités et pression n'étant pas identiques concernant ces trois simulations, les images ont été prises pour des évolutions de préformes jugée équivalentes. Les temps et itérations auxquelles ont été prises ces images sont référencés dans le **tableau 3.3**.

Sans surprise, l'évolution de la préforme durant le soufflage diffère d'un cas à

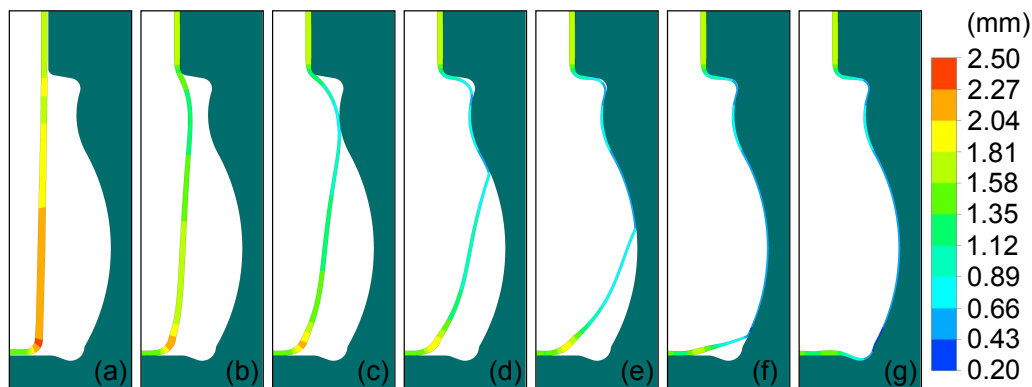


FIGURE 3.21 – Évolution de la préforme pendant les soufflage - Pression constante imposée - modèle de Cross

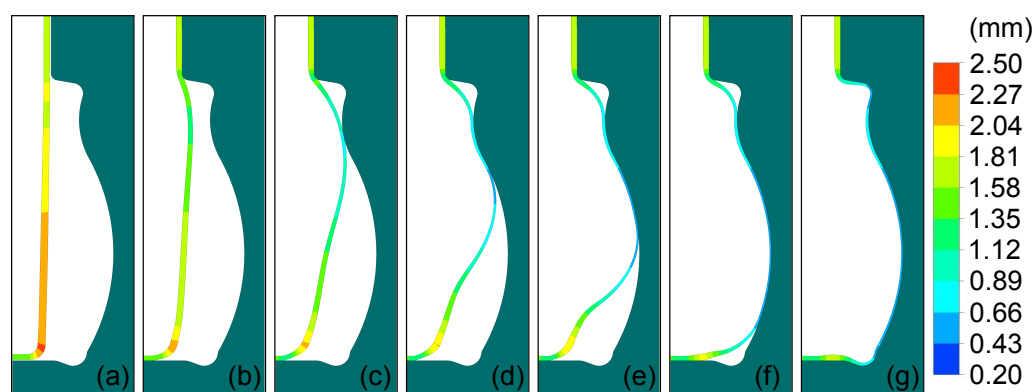


FIGURE 3.22 – Évolution de la préforme pendant les soufflage - Pression variable imposée - modèle de Cross

l'autre. En comparant les modèle Cross à pression constante et pression variable, le premier constat à faire que le calcul à pression constante est plus long, avec presque trois fois plus d'itérations pour parvenir à une préforme épousant complètement le moule. Les temps pendant le soufflage sont en revanche bien inférieurs dans le cas à pression constante. Le temps du procédé est directement lié au rapport de la viscosité sur la pression de soufflage. Avec une pression constamment à 2.5bar, les temps de mise en forme sont de fait plus courts, à viscosité égale, qu'avec la pression variable imposée.

Jusqu'au premier contact (image (c)), les différences reposent seulement sur les échelles de temps. La préforme est en mode de soufflage libre, exceptée au voisinage des zones du goulot et du fond de bouteille qui elles sont déjà en contact. Les sollicitations sont principalement extensionnelles, selon la direction radiale et la direction tangentielle. Une fois le premier contact fait, les nœuds en contact cessent de se déplacer, du fait de la pénalisation induite par le problème de contact. Au voisinage de ces nœuds, une sollicitation de cisaillement va donc apparaître de par le fort gradient de vitesse. La matière soufflée à pression constante est soumise à un plus grand cisaillement, car les vitesses de déplacement sont plus importantes, et donc le gradient de vitesse est plus accentué au voisinage des nœuds en contact avec le moule. La viscosité, de par la loi de Cross, décroît donc plus dans le cas à pression constante qu'à pression variable. Ceci est appuyé par le fait que les zones

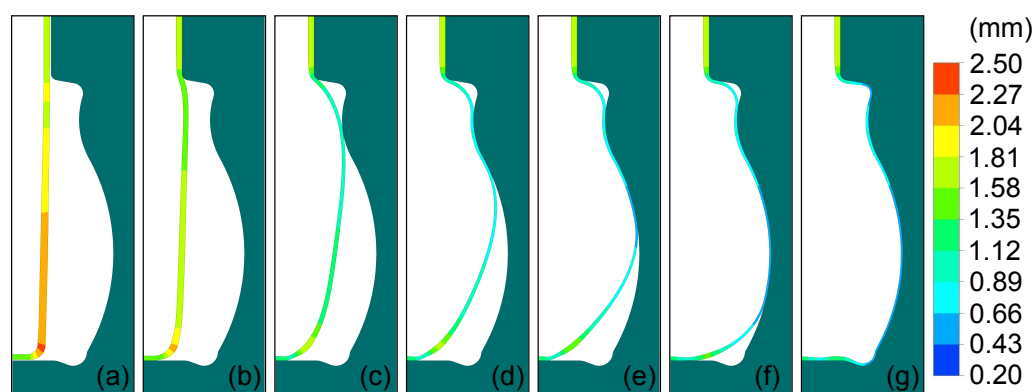


FIGURE 3.23 – Évolution de la préforme pendant les soufflage - Pression variable imposée - modèle newtonien

TABLE 3.3 – Temps depuis le début du soufflage et itérations de prise d'image :

Image	Cross $P_{\text{constante}}$		Cross $P_{\text{variable}}$		newtonien $P_{\text{variable}}$	
	t [s]	itération	t [s]	itération	t [s]	itération
a	$1E-4$	1	$1E-4$	1	$1E-4$	1
b	$7E-4$	26	$6.36E-2$	34	$1E-2$	31
c	$9E-4$	38	$8.46E-2$	44	$1.45E-2$	41
d	$1E-3$	133	$9.04E-2$	66	$1.58E-2$	76
e	$1.1E-3$	260	$9.31E-2$	98	$1.62E-2$	106
f	$1.3E-3$	510	$9.77E-2$	150	$1.7E-2$	155
g	$3.6E-3$	609	$2.22E-1$	208	$2.08E-2$	224

proches du goulot et du fond de bouteille viennent en contact avec le moule plus tôt (relativement au temps total de soufflage de chaque cas) dans le cas de la pression constante que le cas de la pression variable.

Ces explications justifient le fait de ne pas montrer l'évolution de la préforme dans le cas du modèle newtonien à pression constante. Mis à part une échelle de temps différente, l'évolution de la préforme est identique car la viscosité est insensible au cisaillement. En comparant les modèles Cross et newtonien à pression variable imposée, il apparaît que le cas newtonien est de manière plus homogène. Seuls les écarts de températures impactent la viscosité dans le cas newtonien, l'évolution de la préforme est insensible au cisaillement et seuls la distance au moule et le couple épaisseur/température local régissent l'évolution de la préforme.

Le fait que le cas newtonien soit soufflé plus vite est pour le moment une question encore ouverte. La viscosité choisie étant celle à cisaillement nul du modèle de Cross, le préforme dans le modèle newtonien a des viscosités supérieures à celles du modèle de Cross. Le temps de soufflage devrait être donc supérieur à celui du modèle de Cross.

Les viscosités min et max, ainsi que les températures min et max à chaque étape du soufflage, sont reprises dans **tableau 3.4**.

TABLE 3.4 – Températures et viscosités durant le soufflage - Pression variable - Cross vs newtonien

Image	Cross $P_{\text{variable}}$				newtonien $P_{\text{variable}}$			
	$\eta$ [Pa.s]		$T$ [°C]		$T$ [°C]			
	min	max	min	max	min	max	min	max
a	4.33E4	6.37E4	127.88	146.51	4.93E4	8.00E4	127.88	146.51
b	8.05E3	7.04E4	128.73	146.42	4.92E4	7.97E4	128.21	146.62
c	2.45E3	7.04E4	128.86	146.39	4.65E4	7.95E4	128.31	148.80
d	1.69E3	7.04E4	128.89	146.38	3.88E4	7.95E4	128.34	156.10
e	7.05E2	7.05E4	128.91	146.38	3.38E4	7.95E4	128.35	161.83
f	1.41E3	7.04E4	128.93	146.40	2.98E4	7.94E4	128.39	167.69
g	1.90E4	7.49E4	129.42	146.06	2.98E4	7.93E4	128.48	167.19

Le cas newtonien présente des viscosités min plus importantes car il n'est pas sensible au cisaillement. Ces hautes viscosités produisent un auto-échauffement plus

important que dans le cas du modèle de Cross, conduisant à des variations de températures max plus importantes.

Le questionnement autour du temps de soufflage du cas newtonien demeure, car les viscosités de ce cas sont effectivement supérieures à celles du cas Cross. Pour une même pression imposée, le temps devrait donc être plus long. La réponse réside sûrement dans le schéma temporel utilisé, qui consiste pour le présent modèle à un schéma d'Euler d'ordre 1.

### 3.2.6 Analyse des composantes du tenseur des taux de déformation

La pression imposée impacte directement la déformation de la préforme. Afin de mieux étudier cet impact, les composantes du tenseur des taux de déformations sont analysées. Pour les différents cas présentés plus haut, les 4 composantes  $D_{rr}$ ,  $D_{zz}$ ,  $D_{\theta\theta}$  et  $D_{rz}$  sont extraites du bord interne de la préforme. Le choix de la localisation s'explique par le fait que le problème de contact au niveau du bord externe pourrait complexifier l'analyse de ces données. La trace du tenseur des taux de déformations est déduite afin de s'assurer du respect de l'hypothèse d'incompressibilité.

Les graphiques représentés par la suite représenteront respectivement les données recueillies aux instants correspondant aux instantanés (b), (d), et (f). Les cas sont présentés, pour chaque instant, selon cet ordre : modèle Cross/pression constante, modèle Cross/pression variable, modèle Cross/pression variable avec glissement et modèle newtonien/pression variable.

Dans la discussion à suivre, le terme “aval” désigne le sens du haut vers le bas, soit les valeurs d'abscisse allant de 0 à 1. À l'inverse, le terme “amont” désigne le sens du bas vers le haut, soit les valeurs d'abscisse allant de 1 à 0.

Les **figures 3.24, 3.25, 3.26 et 3.27** représentent donc l'évolution des composantes du tenseur des taux de déformation pour les cas sus-cités à l'instant des images (b), alors que le contact entre le moule et la préforme n'est effectif qu'au niveau du goulot et du fond de bouteille.

Le premier constat est que la trace est quasiment nulle, et bien négligeable au regard des valeurs des composantes diagonales  $rr$ ,  $zz$  et  $\theta\theta$ . La trace de  $\underline{D}$  suit l'hypothèse d'incompressibilité faite sur le champ de vitesse. À noter la présence de sursauts aux voisinages des zones de contact mais cela suit le sursaut de la composante  $zz$  et est imputable à un effet numérique.

Le deuxième constat à faire est que la préforme est majoritairement en état de soufflage libre en dehors des voisinages des zones de contact. Les composantes  $rr$  et  $\theta\theta$  sont prédominantes et suivent les mêmes tendances.

Au niveau du goulot, entre l'abscisse 0 et l'abscisse 0.17, les composantes sont nulles, la préforme étant en contact avec le moule rapidement, la matière ne bouge plus à cet endroit. Un peu plus loin, à la transition contact/soufflage libre, les composantes  $zz$  et  $rz$  ont un sursaut. La préforme étant en contact en amont, et en soufflage libre en aval, la zone de transition est étirée, d'où un taux de déformation selon  $z$ , et donc un gradient de vitesse qui génère un cisaillement.

Les formes des évolutions des composantes du tenseur des taux de déformations sont identiques pour les cas modèle Cross/pression variable avec et sans glissement. Le cas modèle Cross/pression constante affiche les mêmes faciès, si ce n'est

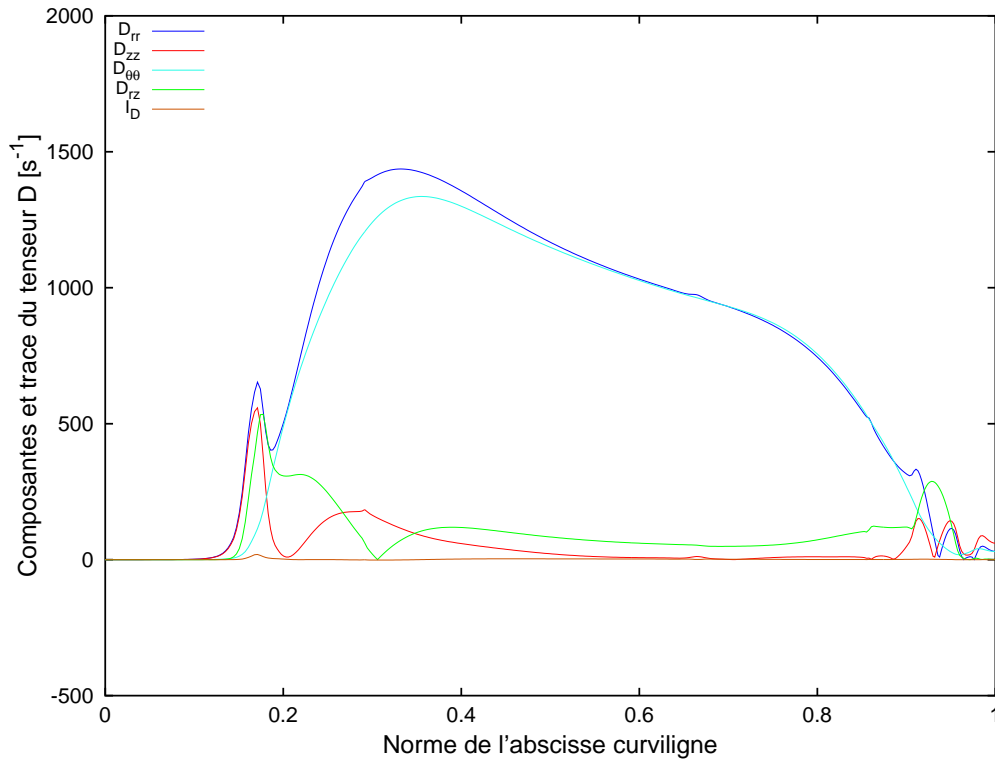


FIGURE 3.24 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression constante - temps correspondant à l'image (b)

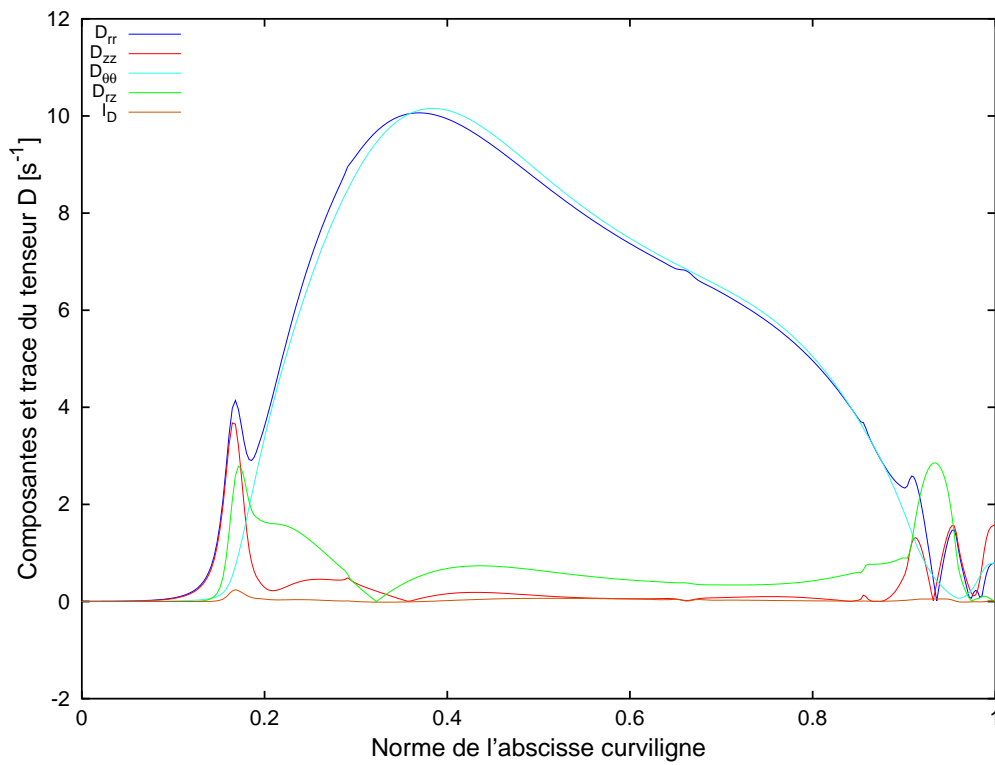


FIGURE 3.25 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - temps correspondant à l'image (b)

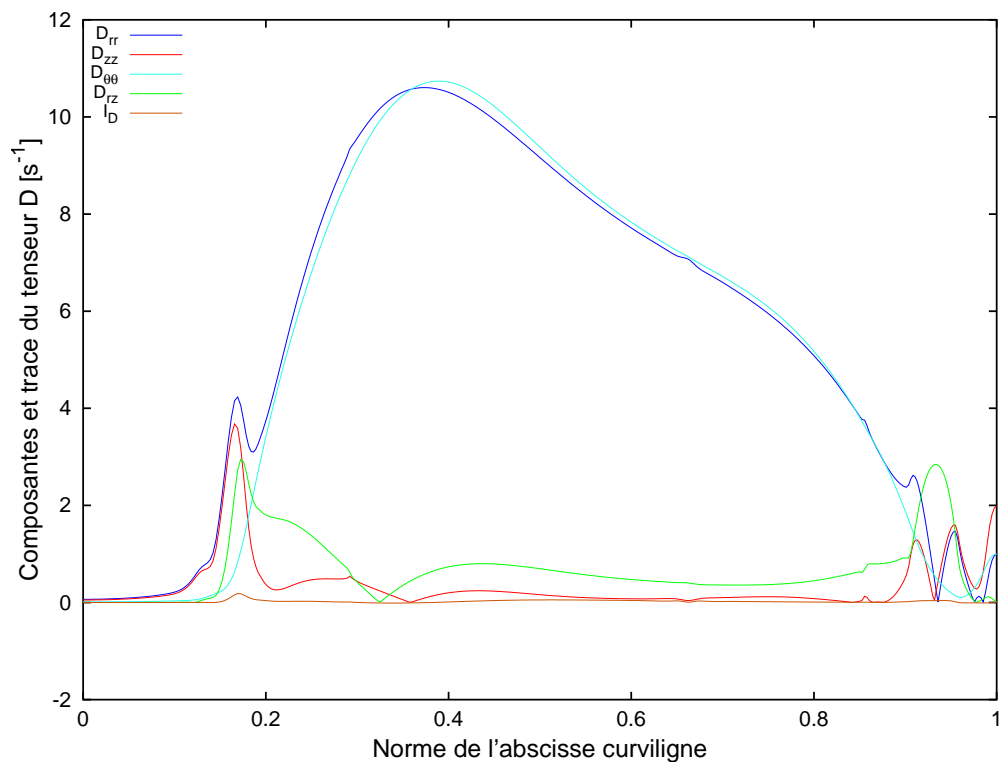


FIGURE 3.26 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - Glissement - temps correspondant à l'image (b)

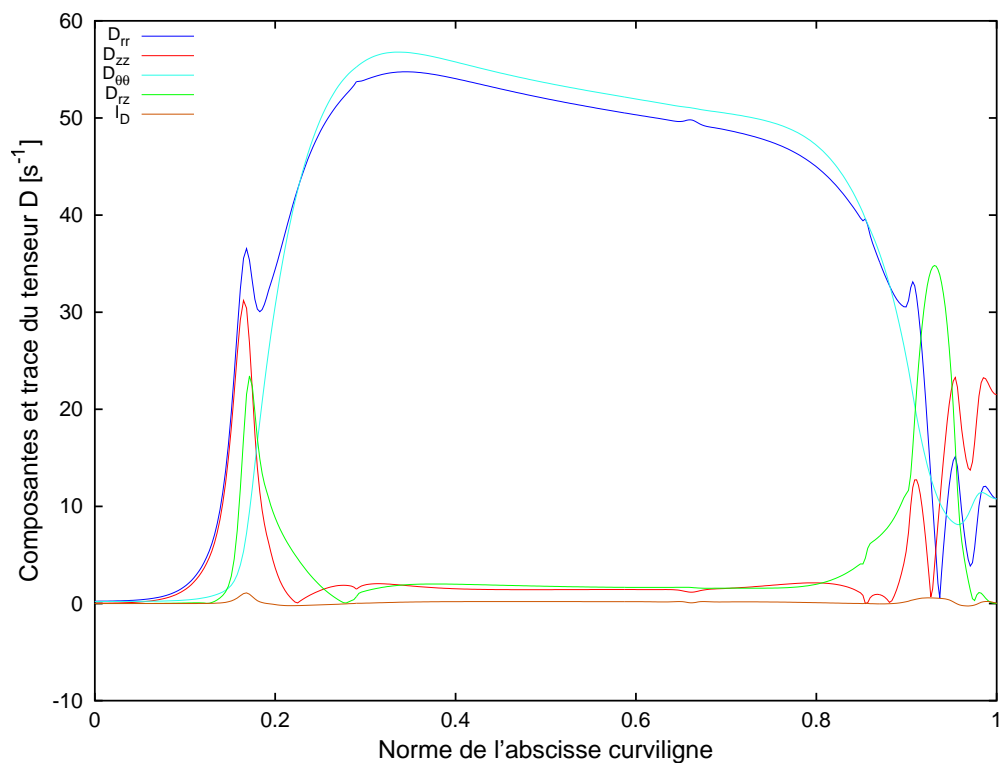


FIGURE 3.27 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle newtonien - Pression variable - temps correspondant à l'image (b)

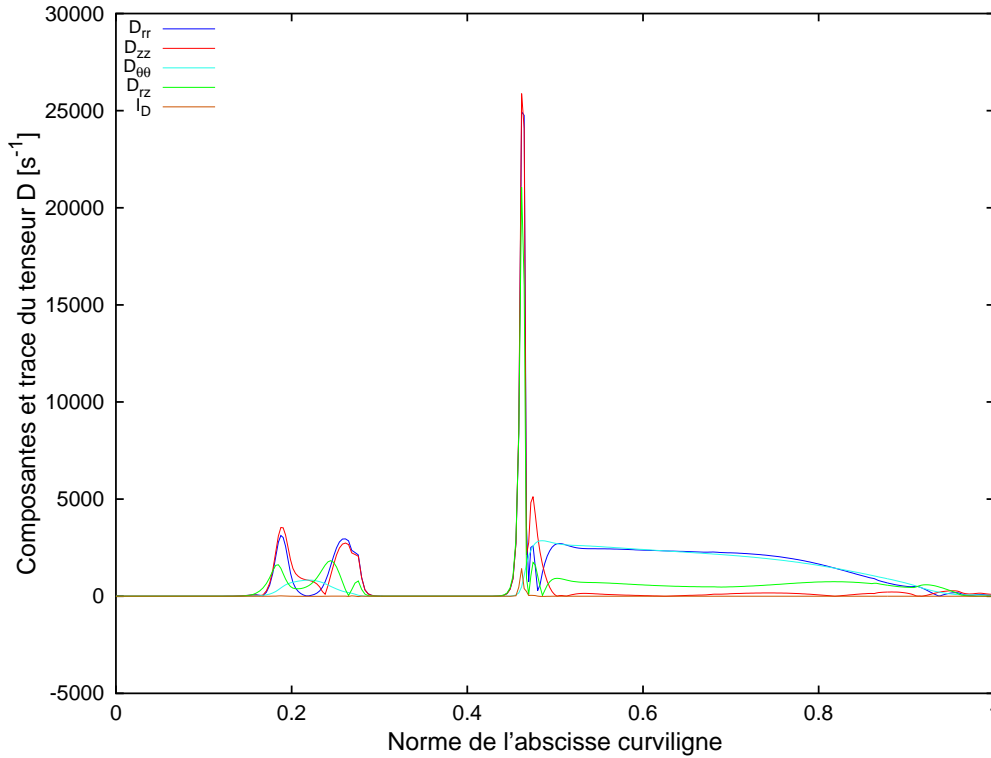


FIGURE 3.28 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression constante - temps correspondant à l'image (d)

que l'ordre de grandeur des composantes est bien supérieur, avec un facteur de plus de 100. Le cas newtonien/pression variable présente par contre des évolutions différentes.

Il y a globalement la même évolution : contact/zone d'étirage-cisaillement/zone de soufflage libre/zone d'étirage-cisaillement/contact. Cependant, les composantes  $rr$  et  $\theta\theta$  présentent moins de variation dans le sens de l'épaisseur. Ceci s'explique par le fait que la viscosité est insensible au cisaillement. À l'abscisse 0.19, le cisaillement est élevé et dans trois autres cas, c'est en aval de cette zone que les composantes  $rr$  et  $\theta\theta$  sont maximales et présentent une singularité plus prononcée que dans le cas newtonien. La viscosité ayant diminué du fait du cisaillement local, la préforme présente alors une zone plus faible à cet endroit que dans le cas newtonien. L'avancée plus uniforme de la préforme durant le soufflage va donc modifier les évolutions à venir des composantes du tenseur des taux de déformation.

Les **figures 3.28, 3.29, 3.30 et 3.31** montrent l'évolution des composantes du tenseur des taux de déformation pour les différents cas à l'instant des images (d), alors que le contact avec le moule est réalisé dans la hauteur de la préforme et s'est propagé de part et d'autre du premier point de contact dans la hauteur.

En plus du goulot, la préforme est désormais en contact avec le moule dans la hauteur. Les zones intermédiaires, entre le goulot et ce nouveau contact, et entre le fond de bouteille et ce contact, présentent des faciès différents de ceux observés précédemment.

Concernant tout d'abord le cas Cross/pression constante, une forte singularité apparaît en aval de la nouvelle zone de contact. Les 4 composantes y sont à peu



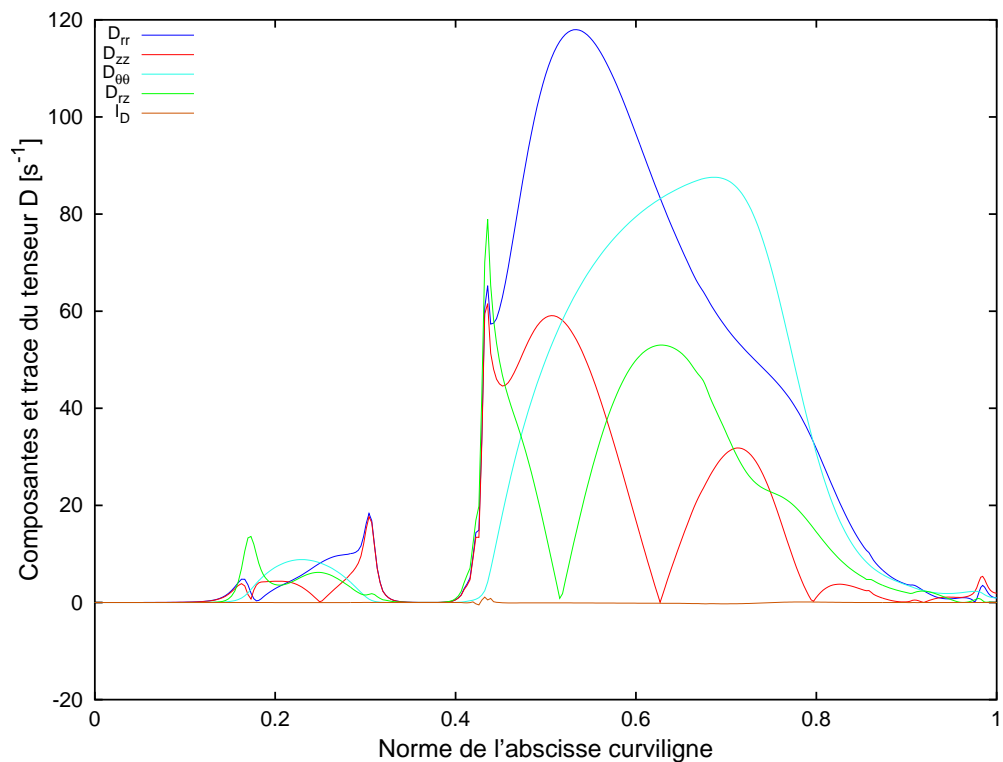


FIGURE 3.29 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - temps correspondant à l'image (d)

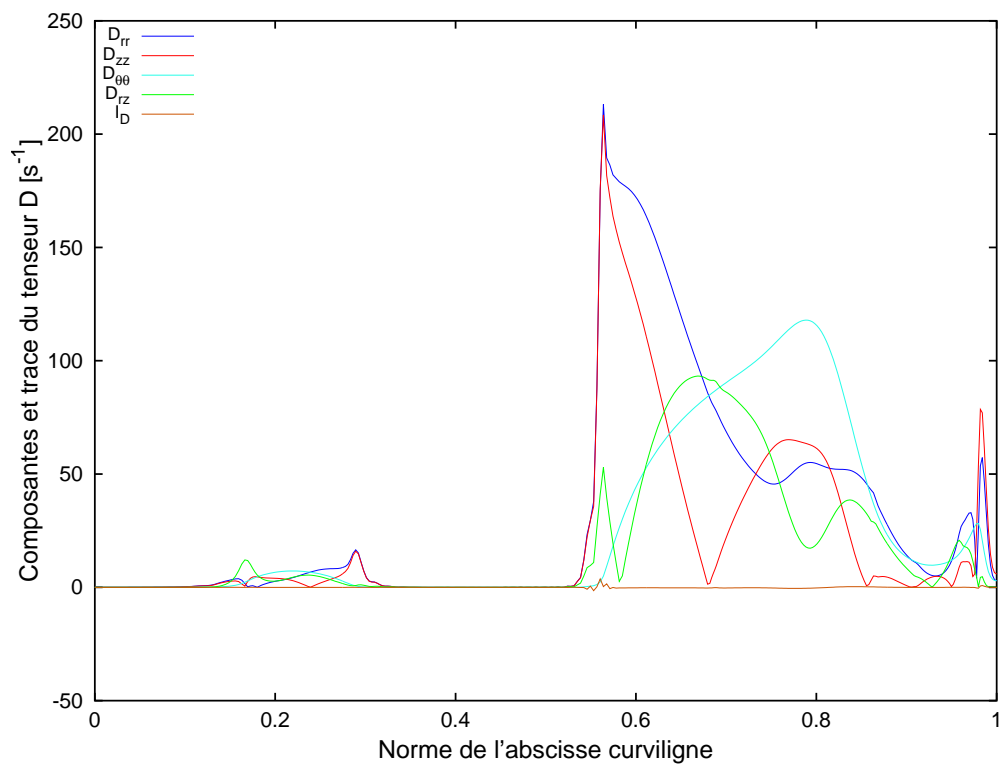


FIGURE 3.30 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - Glissement - temps correspondant à l'image (d)

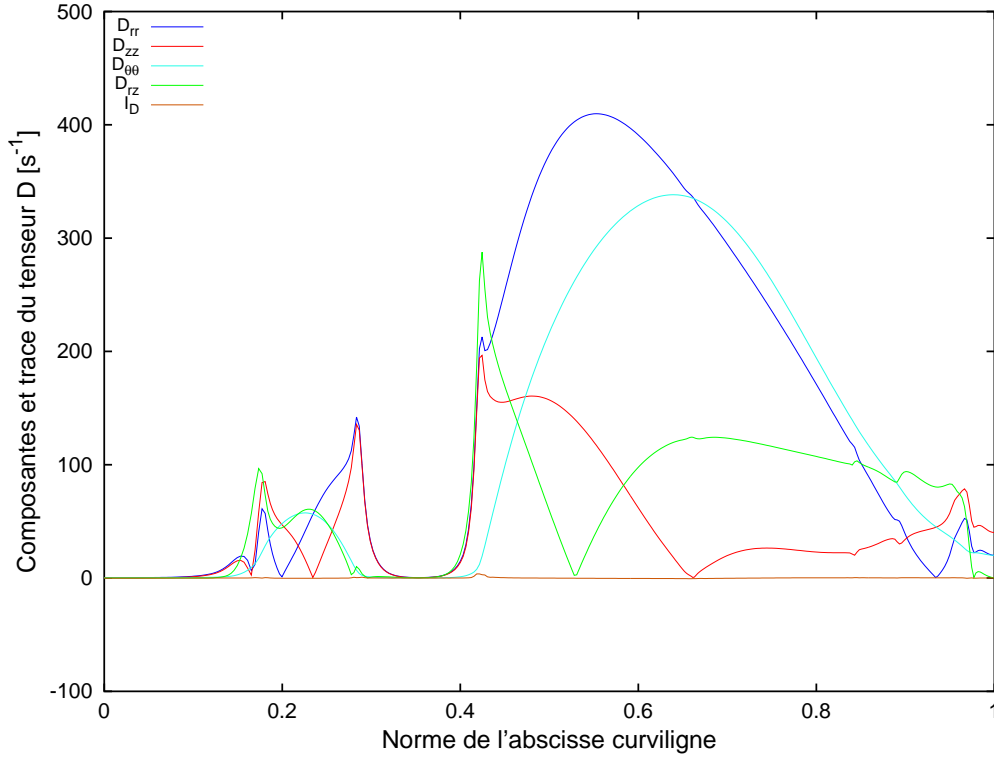


FIGURE 3.31 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle newtonien - Pression variable - temps correspondant à l'image (d)

près du même ordre. En amont de cette zone, deux singularités mineures sont à signaler, correspondant aux zones de transition contact/non-contact. Le cisaillement, au niveau de ces singularités, apparaît plus faible que les composantes normales mais n'est pas non plus négligeable. En aval de la plus forte singularité, la préforme est en état de soufflage libre comme vu précédemment, bien que la composante de cisaillement soit plus élevée que dans les cas de soufflage libre avant le nouveau contact.

Le cas Cross/pression variable présente quant à lui, en aval de cette nouvelle zone de contact, un pic du taux de cisaillement qui passe au dessus des 3 composantes normales. Tandis qu'en amont de cette zone, deux singularités mineures sont présentes mais la première concerne les composantes  $rr$  et  $zz$ , tandis que la deuxième, plus en amont concerne le taux de cisaillement seul. Là où, dans le cas à pression constante, la matière à cet endroit se rapprochait du moule de part et d'autre, il apparaît qu'à pression variable imposée la préforme ne s'en rapproche pas de manière si égale de part et d'autre. En aval de la nouvelle zone de contact, la préforme n'est pas en état de soufflage libre car le taux de cisaillement et la composante  $zz$  sont présentes à des ordres de grandeur équivalents aux valeurs des composantes  $rr$  et  $\theta\theta$ . Cette contribution du cisaillement et de l'étirage suivant  $z$  vient alors déséquilibrer les composantes  $rr$  et  $\theta\theta$ , qui suivent les mêmes tendance en cas de soufflage libre. Il est intéressant de voir que, dans cette zone en aval de la zone de nouveau contact, lorsque la composante de cisaillement est maximale alors la composante suivant  $z$  est minimale, voir presque nulle, et inversement.

Le constat est presque identique pour le cas Cross/pression variable avec glis-

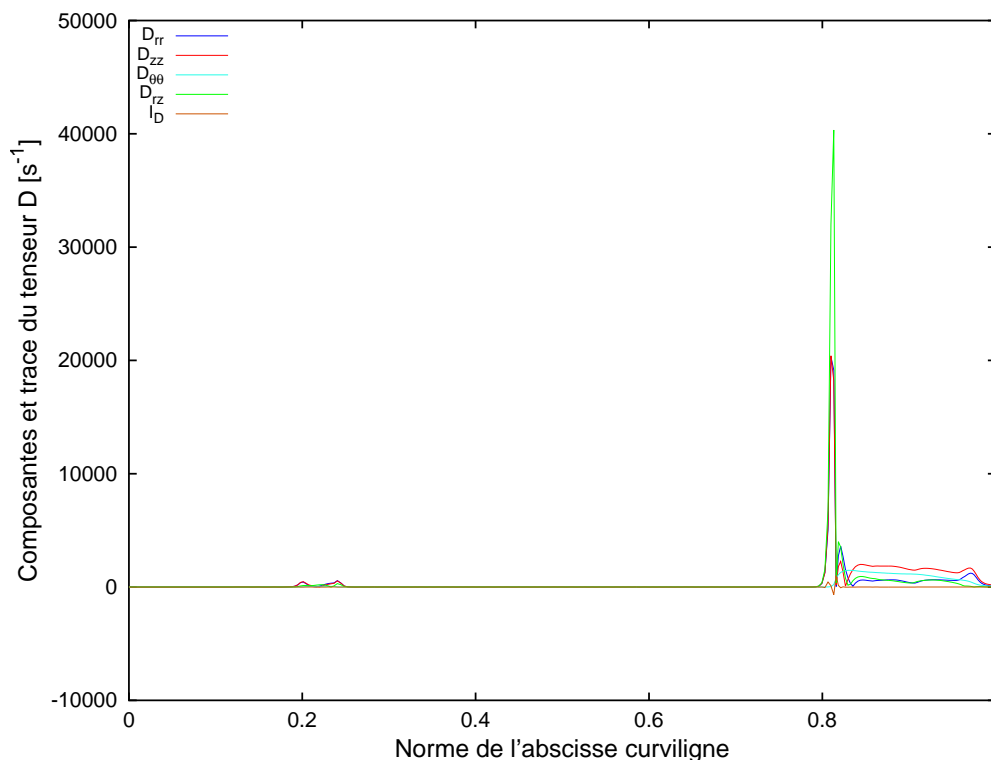


FIGURE 3.32 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression constante - temps correspondant à l'image (f)

sement. Cependant, la composante  $zz$  y est plus importante. Il est à noter que les évolutions entre le cas avec et sans glissement n'en sont pas au même stade. Les temps sont identiques mais le cas avec glissement est plus en avance en terme d'évolution de la préforme. Aller plus en avant dans la comparaison ne serait donc pas pertinent.

Le cas newtonien/pression variable présente également ces mêmes variations. Cependant, en aval de la zone de nouveau contact, l'évolution des composantes est moins perturbée. Les composantes  $rz$  et  $zz$  présentent des singularités moins prononcées et les composantes  $rr$  et  $\theta\theta$  suivent la même tendance sur une plus grande zone.

Les **figures 3.32, 3.33, 3.34 et 3.35** représentent enfin l'évolution des composantes du tenseur des taux de déformation pour les différents cas à l'instant des images (f), alors que la préforme est presque en contact total avec le moule.

Aux instants des images (f), la préforme est majoritairement en contact avec le moule. Seules les zones de transition hauteur/goulot et hauteur/fond de bouteille restent à compléter.

Le cas à pression constante imposée présente encore une forte singularité, dans le sens d'avance de la préforme le long de la paroi du moule. La zone de transition goulot/hauteur de préforme présente encore les deux singularités mineures. En aval de la singularité majeure, la composante  $zz$  est supérieure aux composantes  $rr$ ,  $\theta\theta$  et  $rz$ . La composante  $\theta\theta$  vient en seconde tandis que les composantes  $rr$  et  $rz$  sont au même niveau. L'expansion n'est plus radiale mais longitudinale, selon la direction  $z$ .

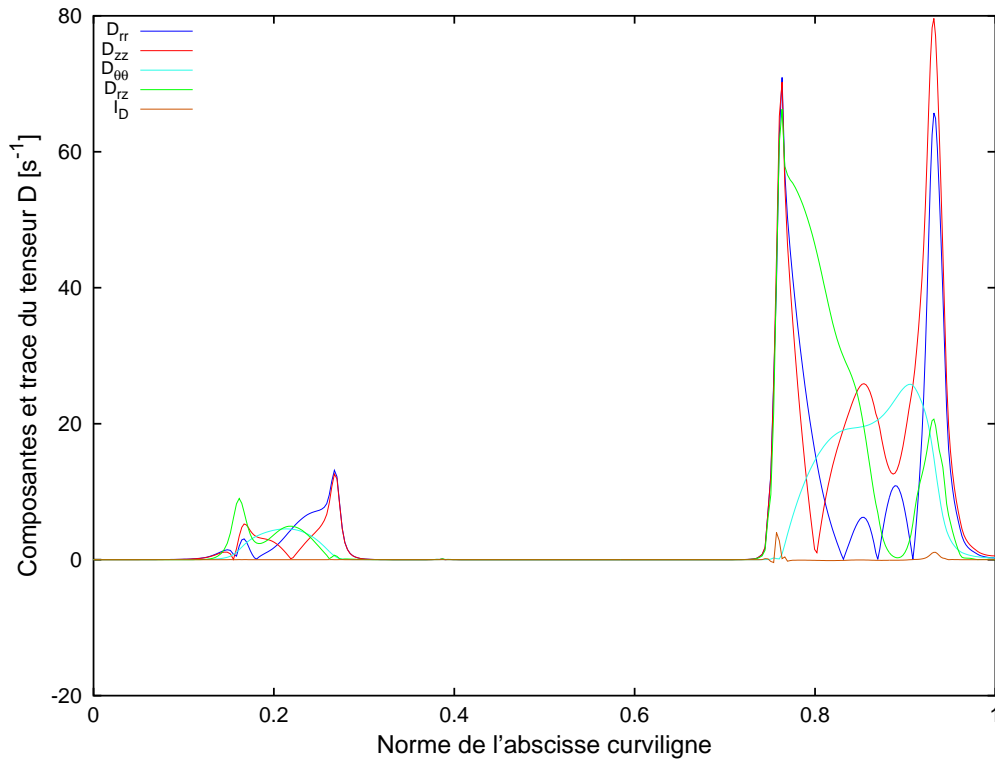


FIGURE 3.33 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - temps correspondant à l'image (f)

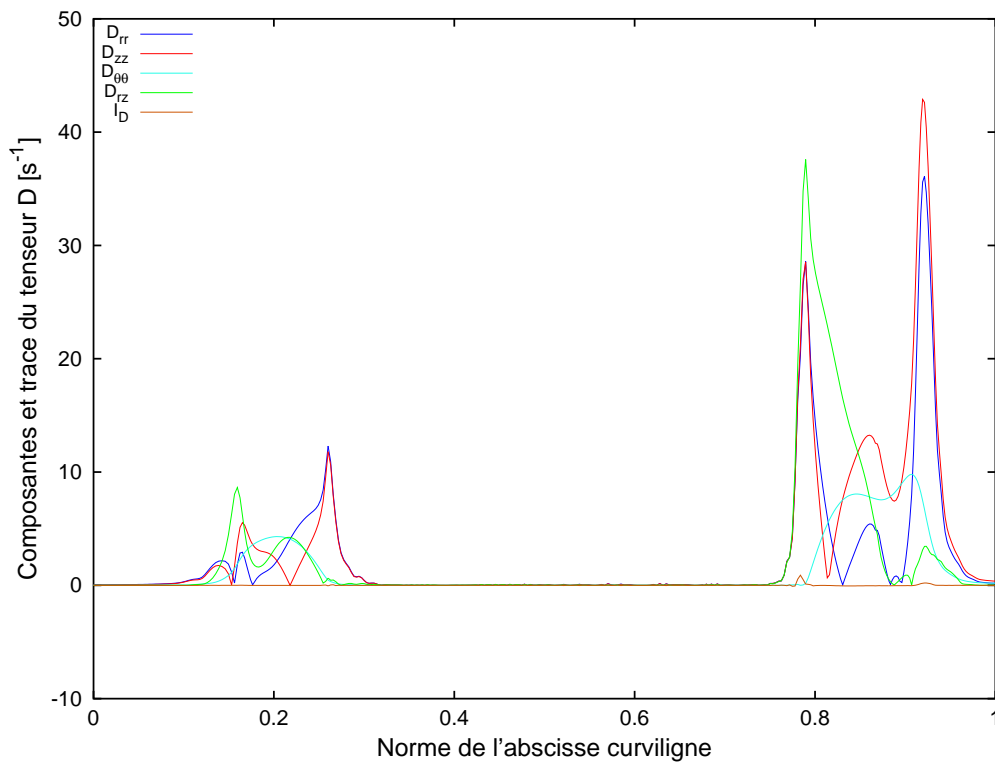


FIGURE 3.34 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle de Cross - Pression variable - Glissement - temps correspondant à l'image (f)

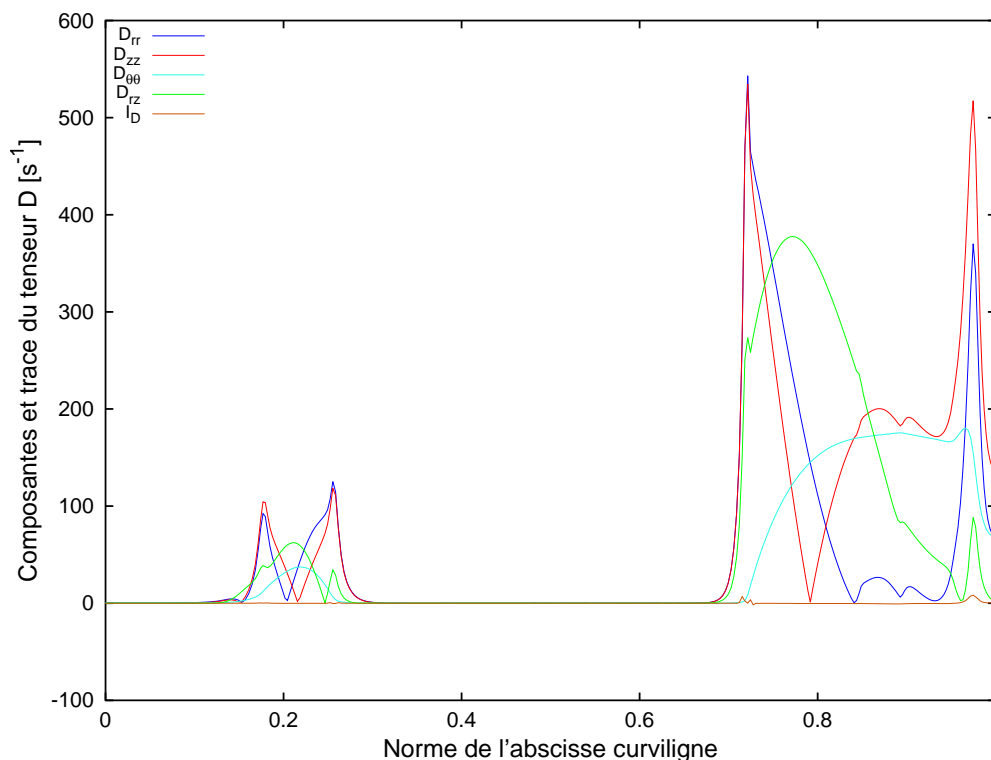


FIGURE 3.35 – Évolution des composantes et de la trace du tenseur des vitesses de déformation le long du bord interne de la préforme - Modèle newtonien - Pression variable - temps correspondant à l'image (f)

Les cas Cross à pression variable, avec et sans glissement, présentent les mêmes faciès. Deux zones présentant deux singularités. La zone de transition goulot/hauteur présente en amont une singularité en cisaillement et, en aval, une singularité radiale et angulaire. La zone de transition hauteur/fond de bouteille présente un faciès différent. Elle présente en amont, la composante de cisaillement présente une singularité, mais également les composantes longitudinales et radiales. En aval, les composantes longitudinales et radiales sont prépondérantes tandis que la composante de cisaillement présente une singularité mais de moindre amplitude.

Le cas newtonien présente des faciès semblables, à cela près que la composante de cisaillement est plus effacée que dans les deux cas précédents.

Les modes de sollicitation durant le soufflage sont donc fortement dépendants de la pression de soufflage comme attendu. La présence d'un cisaillement non négligeable ne fait que conforter le choix de la loi de comportement. Ces résultats soulignent également que les sollicitations extensionnelles ne sont pas à négliger. Il serait donc avisé d'étudier l'évolution de la viscosité sous sollicitations extensionnelles. Cependant, caractériser la réponse de polymères fondus en sollicitations extensionnelles n'est pas chose triviale. Et à défaut de moyens d'identifier cette réponse du matériau à de telles sollicitations, il est préférable de garder une viscosité ayant une réponse isotrope aux taux de déformation -réponse ayant été identifiée sous cisaillement et supposée identique pour les autres modes de sollicitation-, plutôt qu'une loi plus complexe dont les paramètres ne sauraient être identifiés en l'état.

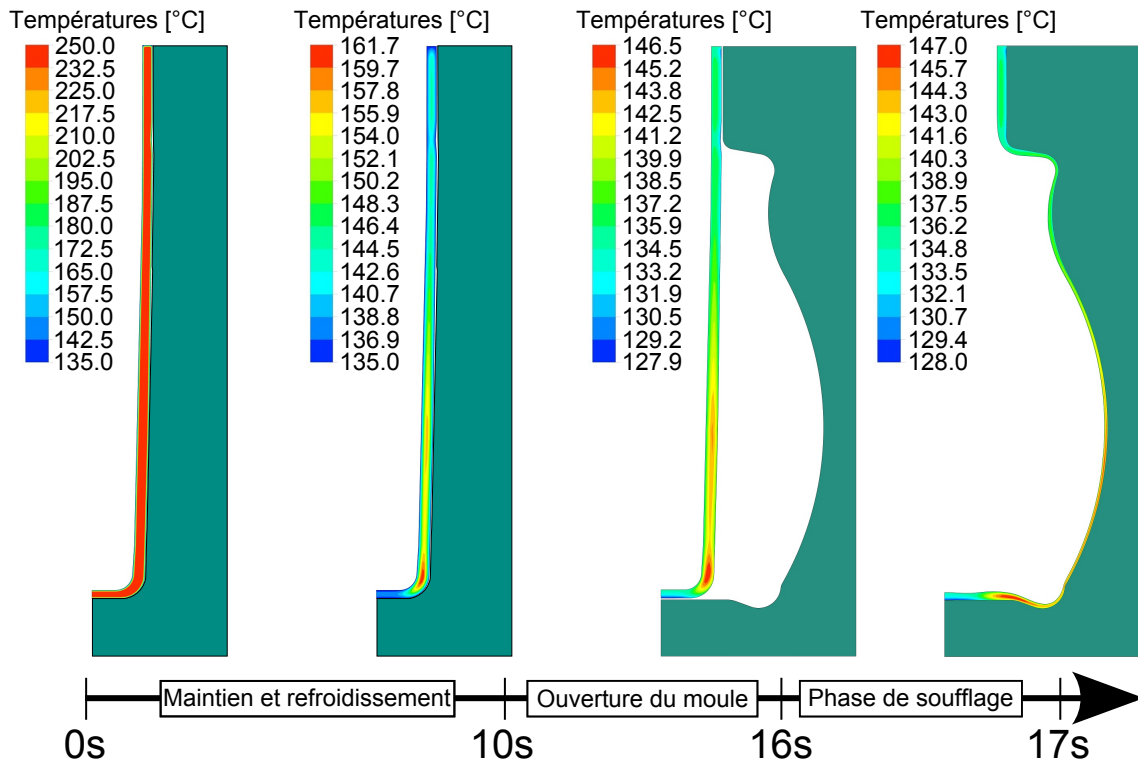


FIGURE 3.36 – Évolution de la température durant les différentes phases simulées du procédé - Température imposée aux limites

### 3.2.7 Effet des conditions limites thermiques

Les conditions aux limites thermiques sont des températures imposées aux limites du domaine fluide en contact avec les outillages. Les températures sont imposées comme les températures de régulation des outillages (moule et broche). Une approche plus réaliste consisterait à modéliser les échanges à ces interfaces par une condition de flux, composée d'un coefficient d'échange thermique fixé à  $4600\text{W.m}^{-2}.\text{K}^{-1}$ , une valeur standard pour les modélisations d'échange thermique entre acier et polymère notamment utilisée dans le logiciel Moldflow.

$$q = h(T - T_{\text{reg}}) \quad (3.12)$$

avec  $q$  le flux de chaleur,  $h$  le coefficient d'échange entre l'acier et le polymère,  $T$  la température du polymère et  $T_{\text{reg}}$  la température de régulation de l'outillage supposée constante.

Les températures de  $135^\circ\text{C}$  imposées aux limites dans le modèle standard sont remplacées par un calcul de flux de chaleur. Les **figures 3.36** et **3.37** montrent l'évolution des températures à chaque étape du modèle numérique.

Les champs de températures ne présentent pas de différences flagrantes. Les conditions de flux de chaleur conduisent vers des températures sensiblement supérieures.

La **figure 3.38** compare les répartitions d'épaisseurs finales concernant ces deux simulations.

Bien que les champs de températures semblaient relativement identiques, les répartitions d'épaisseurs finales sont différentes, surtout dans la zone où l'étrépage est le plus important.

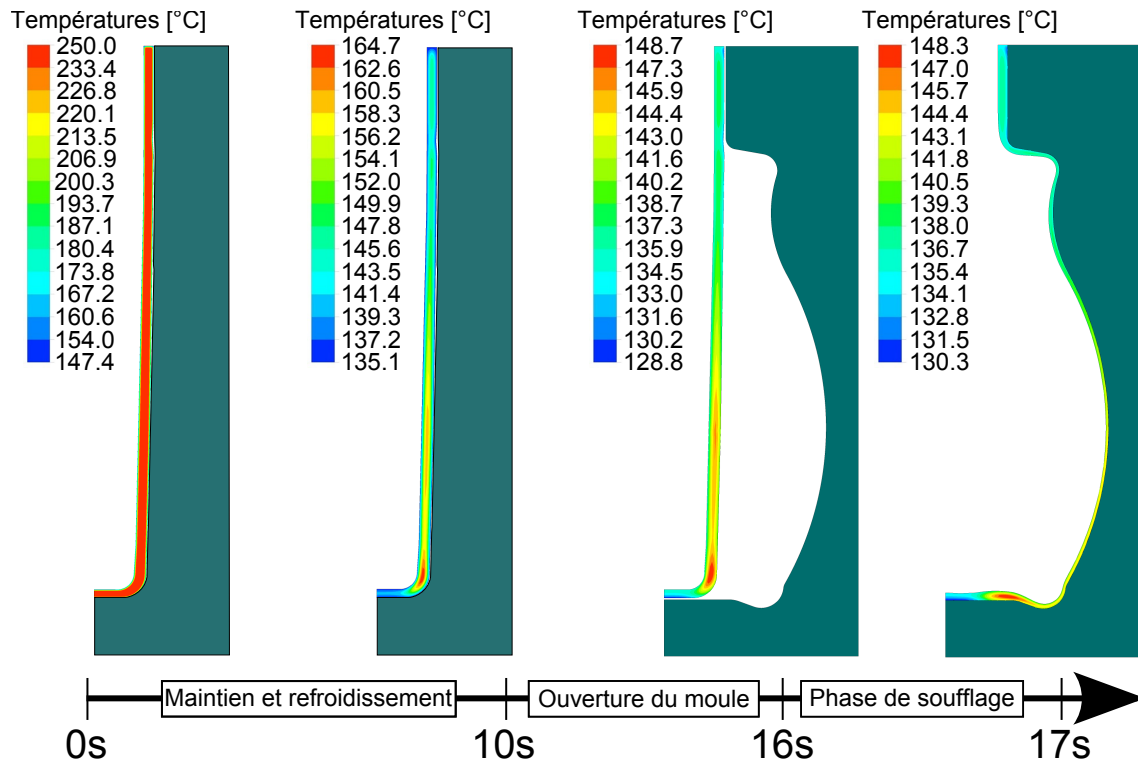


FIGURE 3.37 – Évolution de la température durant les différentes phases simulées du procédé - Flux de chaleur imposé aux limites

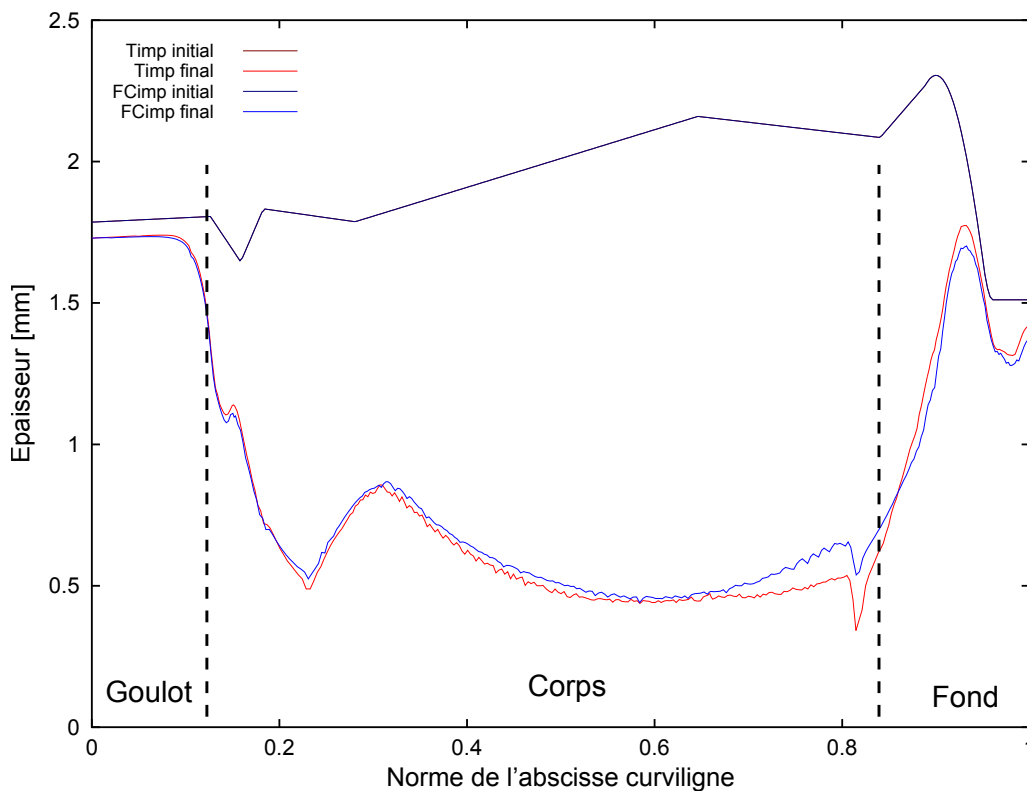


FIGURE 3.38 – Effet des conditions thermiques imposées : Températures imposées (rouge) - Flux de chaleur imposés (bleu)

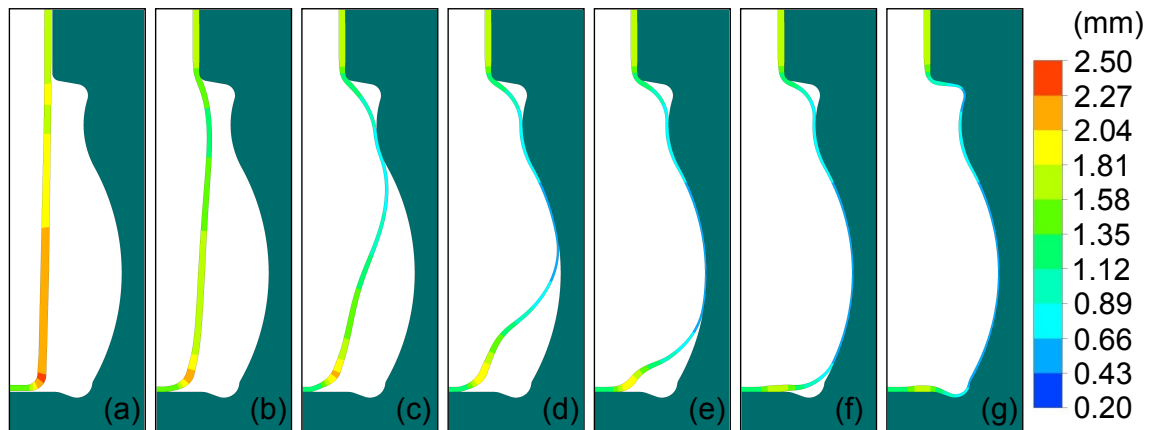


FIGURE 3.39 – Évolution de la préforme pendant les soufflage - glissement à la paroi - modèle de Cross

### 3.2.8 Effet des conditions de contact

Afin d'étudier l'effet des conditions de contact sur le modèle, le coefficient de frottement (cf **équation 3.1.4**) fixé à la même valeur que le coefficient de pénalité (cas 1 : pas de glissement) est divisé par 100 (cas 2 : glissement), favorisant ainsi le glissement car inférieur au coefficient de pénalité de contact normal.

La **figures 3.39** montre l'évolution de la préforme au cours du soufflage pour le cas avec glissement. Le cas sans glissement correspond au cas modèle de Cross avec la pression variable imposée et l'évolution de la préforme est présentée à la **sous-section 3.2.5, figure 3.22**.

**Remarque :** les images sont prises à des temps quasi-équivalents, excepté pour le temps de la dernière image. Le cas avec glissement finit de remplir le moule après 0.2165s de soufflage contre 0.2228s pour le cas sans glissement (cf **tableau 3.3** pour les temps des autres images).

Les évolutions lors du soufflage sont très semblables. Dès l'image (c), le cas avec glissement est en avance sur le cas sans glissement.

La **figure 3.40** compare les répartitions d'épaisseurs finales pour les deux cas.

Les résultats sont différents. Mais bien que les cinétiques de soufflage soient très dissemblables, les épaisseurs finales ne sont pas si éloignées. Une identification inverse du jeu de paramètres modélisant le contact serait possible via la visualisation de l'évolution du soufflage durant le procédé (visualisation in-situ).

## 3.3 Résultats numériques et confrontation aux mesures expérimentales

### 3.3.1 Résultats de la géométrie flacon

La géométrie étudiée ici est la géométrie flacon, plus complexe car présentant plusieurs changements de courbure. Cette géométrie a été choisie afin de montrer le



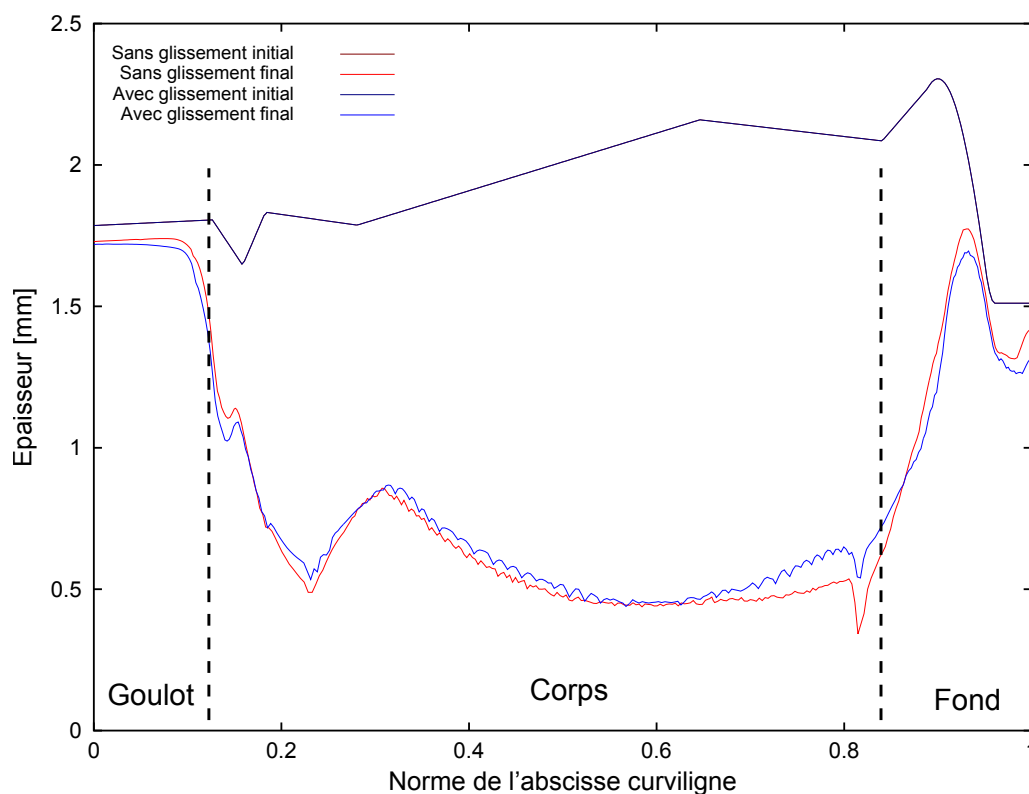


FIGURE 3.40 – Effet des conditions de contact au moule : non-glissement (rouge) - glissement (bleu)

potentiel du procédé développé dans le projet IS<sup>2</sup>.

Comme le montre la **figure 3.36** (voir **sous-partie 3.2.7**), la température diminue beaucoup durant la première phase du procédé. La matière injectée est dans l’empreinte de la préforme et la différence entre la température d’injection de 240°C et la température du moule de 135°C est grande. Un point chaud demeure dans le coude de la préforme, tandis qu’un deuxième, moins important, peut être aperçu en dessous de celle-ci.

Après l’ouverture du moule, la température diminue encore car la préforme échange des calories avec l’air ambiant mais les poches chaudes demeurent et ont gagné en taille.

Durant le soufflage, la température augmente du fait de l’auto-échauffement se produisant sous cisaillement. La répartition de température le long du bord extérieur de la préforme est représentée **figure 3.41**.

La **figure 3.22** (voir **sous-partie 3.2.5**) montre la déformation de la préforme au cours du temps pour finalement épouser la forme de l’empreinte de la pièce finale. Bien que la partie la plus fine, dans le haut de la bouteille, soit plus froide que la partie la plus épaisse, c’est quand même celle-ci qui est déformée en première. Son voisinage est donc sous le coup d’un gradient de vitesse, et subit donc la rhéofluidification pour devenir suffisamment fluide pour être déformée à son tour plus facilement tandis que le procédé avance. Cela implique que la différence de température n’est pas suffisante pour que la partie la plus épaisse se déforme avant.

Les épaisseurs obtenues numériquement sont ensuite comparées à celles mesurées expérimentalement. Les épaisseurs sont mesurées selon deux méthodes différentes.

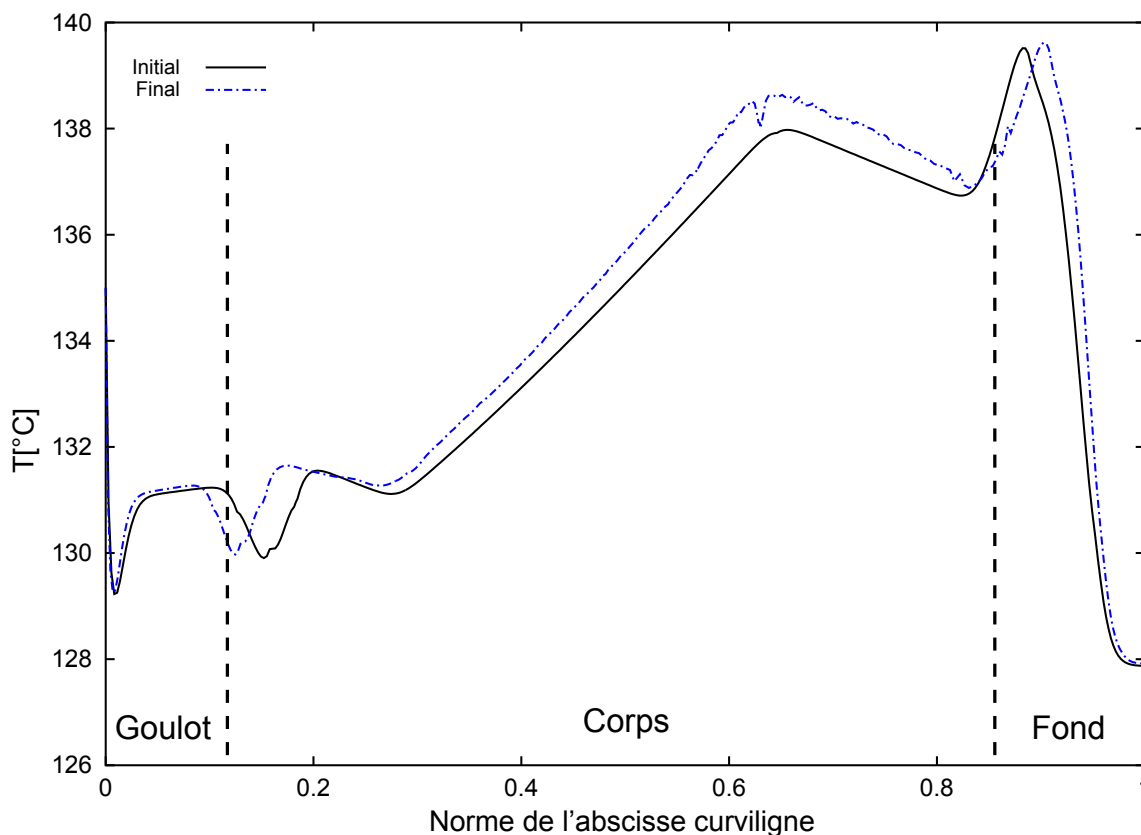


FIGURE 3.41 – Répartitions des températures le long du bord extérieur de la préforme avant soufflage (noir) et après soufflage (bleu)

### 3.3.2 Mesures expérimentales : méthode de numérisation des pièces découpées



FIGURE 3.42 – Image scannée d'une moitié de flacon

Les épaisseurs des pièces soufflées sont mesurées en utilisant une méthode de traitement d'image. Les pièces sont coupées en deux dans le sens de la hauteur et chaque moitié est numérisée par le biais d'un scanner avec une résolution de 2400 dpi (*dot per inch* signifie points par pouce, 1 pouce=25.4mm).

La **figure 3.42** représente une des images obtenues après numérisation. Une méthode de rognage est utilisée afin que chaque image fasse la même taille, avec la moitié de pièce centrée. Cette correction permet de s'assurer que le traitement appliqué est appliqué de la même manière à toutes les images. Un traitement d'image est ensuite utilisé : un seuillage des intensités est réalisé afin d'obtenir une image binaire. Les contours de la pièce sont détectés et les épaisseurs locales sont mesurées. (plus de détail en **annexe A.2**).

L'erreur de la méthode est estimée à  $\pm 1$  pixel, soit  $10\mu\text{m}$ . Dix moitiés de pièce sont ainsi analysées, soit cinq bouteilles. Une répartition d'épaisseur médiane est



FIGURE 3.43 – Une moitié de flacon dans l’enceinte du tomographe

calculée à partir des dix répartitions d’épaisseur obtenues.

La comparaison avec la simulation s’opère via une représentation des épaisseurs en fonction de l’abscisse curviligne normée. L’abscisse curviligne étant calculée comme suit :

$$l_m = \sum_{i=1}^m \sqrt{dx_i^2 + dy_i^2} \quad (3.13)$$

où  $dx_i = x_i - x_{i-1}$  et  $dy_i = y_i - y_{i-1}$

Cela revient à sommer toutes les distances locales entre deux points consécutifs. La discrétisation de ces points permet une définition correcte de l’abscisse curviligne.

### 3.3.3 Mesures expérimentales : tomographie des pièces 3D

Les moitiés de flacon sont également scannées aux rayons X (**figure 3.43**). Des mesures par tomographie ont été réalisées en collaboration avec le laboratoire MA-TEIS de l’INSA Lyon, avec l’aide de Renaud RINALDI et Jérôme ADRIEN. La pièce est balayée dans son volume avec une résolution de 35 microns pour le flacon et 40 microns pour le pot de yaourt. Les images de coupe ainsi obtenues permettent de mesurer des répartitions d’épaisseurs le long de la circonférence du flacon (**figure 3.44**).

Le détails de la méthode d’obtention des répartitions d’épaisseurs est disponible en **annexe A.2**. L’erreur de la méthode est estimée à  $\pm 1$  pixel, soit 35 microns de précision pour les mesures réalisées sur la géométrie flacon et 40 microns de précision pour les mesures réalisées sur la géométrie pot de yaourt.

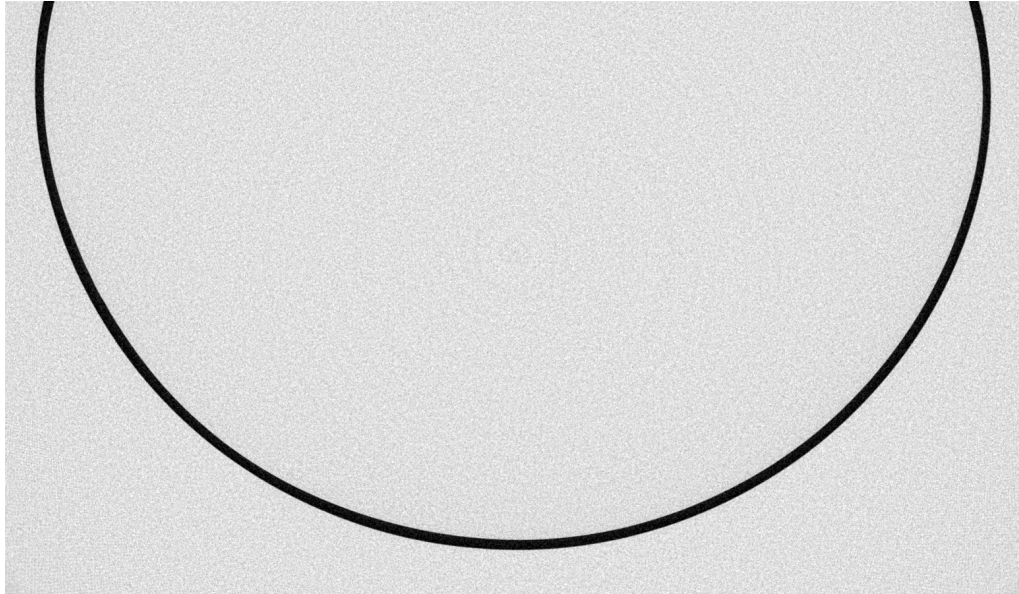


FIGURE 3.44 – Exemple d'image obtenue

Les images obtenues par tomographie sont des coupes dans le sens de la hauteur de l'objet analysé.

À l'aide du logiciel ImageJ, toutes les coupes successives obtenues sont analysées. En utilisant l'outil de balayage radial, des coupes sagittales sont obtenues tous les  $5^\circ$ . Les répartitions d'épaisseurs sont alors évaluées et les répartitions d'épaisseurs moyennes, minimales et maximales en sont déduites pour chaque échantillon. Les flacons étant coupés en deux, les répartitions moyennes sont obtenues à partir de 36 répartitions, tandis que les répartitions moyennes pour les pots de yaourt sont obtenues à partir de 72 répartitions. La **figure 3.45** illustre le principe d'obtention des répartitions d'épaisseurs.

Les **figures 3.46 et 3.47** montrent les répartitions moyennes obtenues sur les différents échantillons analysés concernant le flacon et le pot de yaourt respectivement. Une plus grande dispersion des épaisseurs est observée concernant la géométrie flacon. Lors du prélèvement des échantillons, la technologie était en phase de développement et de mise au point. Il est bon de noter que sur la géométrie pot de yaourt, la dispersion est bien inférieure. Les pots de yaourt étant mis en forme à l'aide d'un moule conçu récemment et riche des enseignements récoltés lors des essais avec la géométrie flacon.

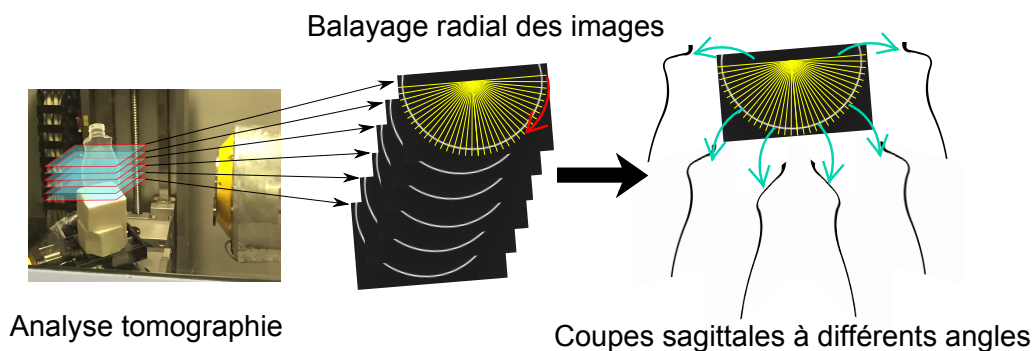


FIGURE 3.45 – Principe d'obtention des résultats d'épaisseurs

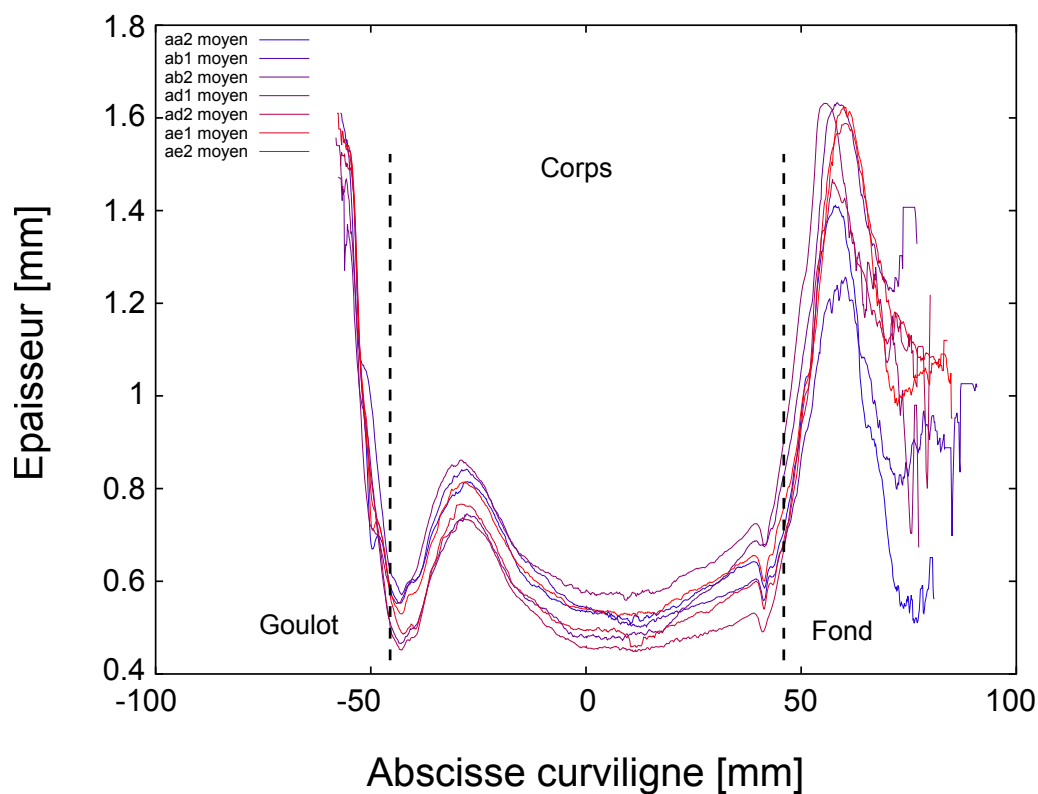


FIGURE 3.46 – Tomographie - Répartition d'épaisseurs moyennes obtenues pour différents échantillons flacons - précision de 35 microns sur la mesure

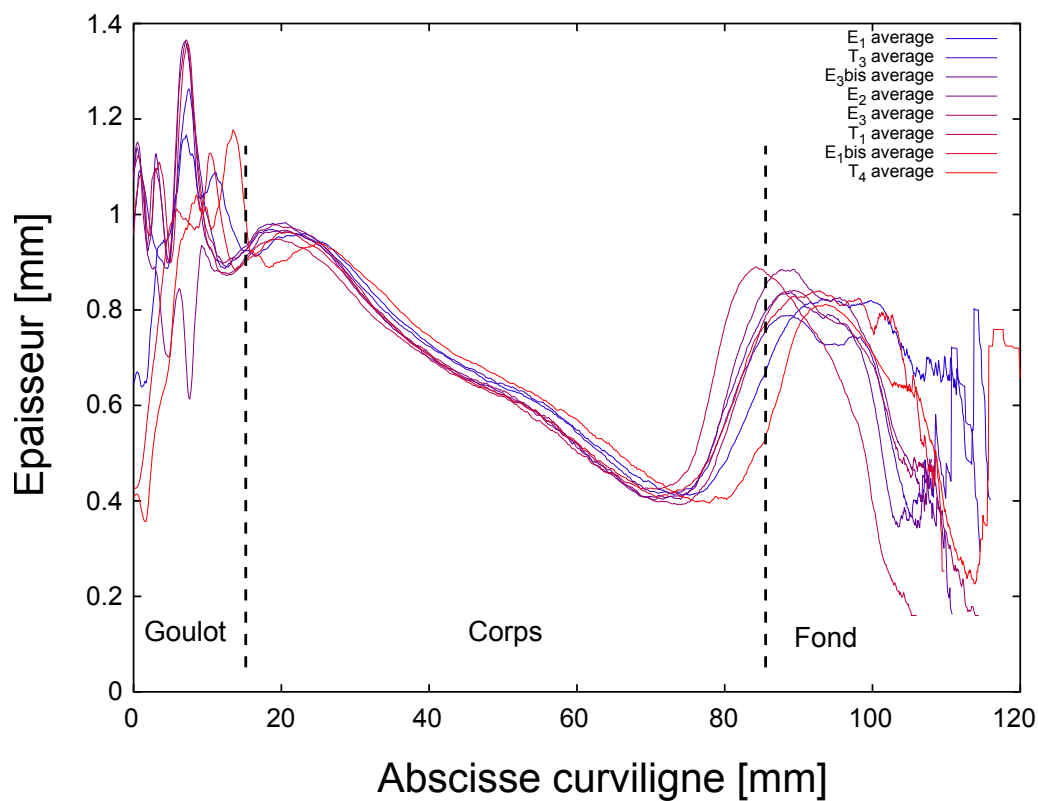


FIGURE 3.47 – Tomographie - Répartition d'épaisseurs moyennes obtenues pour différents échantillons pots de yaourt - précision de 40 microns sur la mesure

Concernant les mesures expérimentales, l'opération de découpe des pièces doit être plus précise afin de minimiser les sources de dispersion dans le traitement d'image et de se rapprocher d'une qualité de résultats proche de la tomographie. L'intérêt de cette méthode est certain car le scanner utilisé permet d'obtenir des images avec une meilleure résolution que les 35 microns de l'analyse par tomographie. L'information ne concernerait que le plan de coupe, contre une information 3D en tomographie, mais la simplicité et l'accessibilité de la méthode en font une démarche intéressante.

De plus, afin d'obtenir un profil médian plus pertinent, il est nécessaire d'augmenter le nombre de mesures. Cette méthode expérimentale est de plus destructive, car les pièces doivent être découpées avant d'être scannées. Une méthode non-destructive serait préférable. La tomographie aux rayons X s'est montrée une solution intéressante mais bien plus coûteuse. Une autre possibilité serait d'utiliser la lumière visible. L'analyse de la première réflexion sur le bord externe de la pièce, et de la seconde réflexion sur le bord interne de la pièce permettrait de calculer la distance séparant ces deux bords, soit l'épaisseur locale. Cette méthode est utilisée par **Béreaux et collab. (2011)** pour mesurer l'épaisseur d'une paraison dans le procédé d'extrusion soufflage.

### 3.3.4 Comparaison des résultats numériques et expérimentaux

La **figure 3.48** montre la comparaison entre l'expérience et la simulation numérique. La région du goulot du flacon présente le plus de disparité car la géométrie a été simplifiée pour les besoins de la simulation numérique : le filet du goulot a été simplifié pour pouvoir utiliser l'approche axisymétrique. Ceci a peu d'influence sur les épaisseurs finales car cette zone est déjà en contact avec le moule dans la réalité donc non-étirée, tandis que dans la simulation un léger écart est imposé afin de ne pas démarrer la simulation sur le problème de contact, ce qui rallongerait les temps de calcul voire empêcherait la convergence. Cette simplification entraîne donc une surestimation des épaisseurs pour la partie numérique sur cette zone. De plus, la méthode de mesure des épaisseurs n'est pas efficiente sur cette zone. Un effet de bord intervient et entraîne une sous-estimation des épaisseurs à cette endroit précis car le changement de direction des normales locales est abrupt ( $90^\circ$ ) du fait de la présence des filets de vis et du passage haut de goulot/intérieur de bouteille. Concernant les autres régions, 82% de concordance est rencontré pour une tolérance de  $100\mu\text{m}$  et 53% pour une tolérance de  $50\mu\text{m}$ .

Les zones nommées Z6 dans la **figure 3.48** ne sont pas correctement définies. Ceci vient du manque de précision de l'opération de découpe des pièces. Sur certaines mesures, le pic présent dans cette région sur la solution numérique est observé sur les répartitions d'épaisseurs expérimentales, mais pas en nombre suffisant pour s'exprimer dans le profil médian. Les bouteilles sont découpées à la scie à ruban, dont l'épaisseur a un grand impact sur la mesure. L'angle de découpe peut conduire quant à lui à des surestimations d'épaisseurs si la bouteille n'est pas coupée droite. De plus, la bouteille n'est pas découpée en son exact milieu, conduisant à des erreurs de mesure également. Au vu de toutes ces sources d'erreur, la comparaison entre simulation et expérience montre quand même des similitudes mais laisse place à l'amélioration



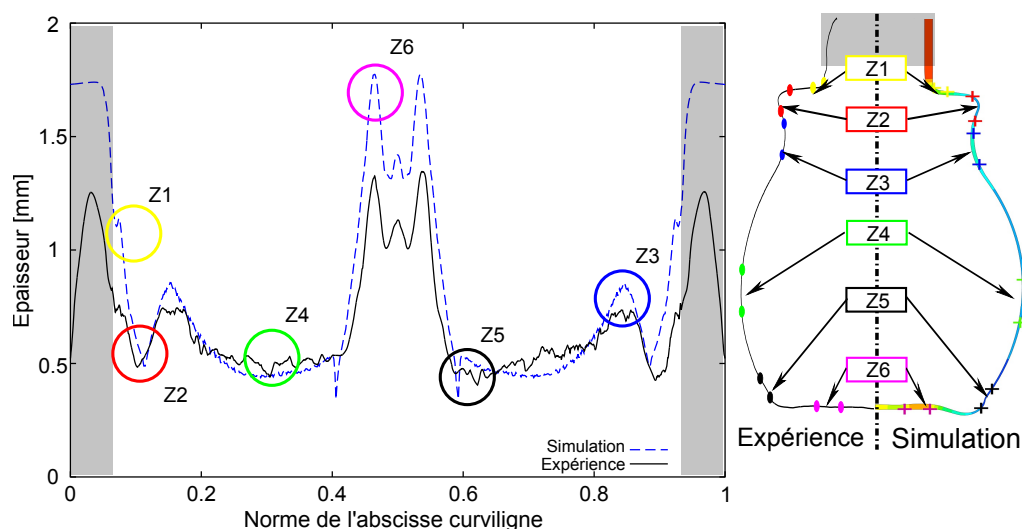


FIGURE 3.48 – Comparaison entre expérience (méthode d'image scannée) et simulation

de la modélisation d'une part, et à une meilleure mesure expérimentale d'autre part.

Les mesures présentées **figure 3.49** montre une meilleure concordance. Les répartitions d'épaisseurs minimale, maximale et moyenne obtenues par traitement des données de tomographie y sont présentées. La dispersion sur les mesures est bien plus faible qu'avec la première méthode et une comparaison plus pertinente avec les résultats numériques est alors possible. Il est à noter que les tendances observée, les différents pics et autres évolutions singulières d'épaisseurs, sont bien représentées dans les résultats de la simulation numérique. Le pic d'épaisseur en fond de bouteille (Z6) est surestimé dans la simulation, tandis que la zone de diminution d'épaisseur (Z3) se rapproche des valeurs minimales observées. Dans la zone (Z4), le maximum local est très proche des valeurs maximales observée. La zone (Z5) est bien représentée, car le minimum local observé numériquement en cet endroit se retrouve dans les observations expérimentales, tandis que la trop grande dispersion de la 1<sup>ère</sup> méthode masque ce détail. La répartition d'épaisseur simulée reste contenue entre les répartition minimales et maximales. Sur la totalité des points comparables, 81% de concordance est rencontré pour une tolérance de 100 $\mu$ m et 61% pour une tolérance de 50  $\mu$ m.

### 3.3.5 Conclusion sur la simulation numérique du procédé IBMSS

La simulation numérique du procédé IBMSS permet de mettre à jour les évolutions de la préforme lors du soufflage. Les épaisseurs finales de la pièce soufflée ne peuvent être prédites avec pour seules connaissances les épaisseurs initiales et les distances au moule et en raisonnant par conservation du volume. Une telle approche, bien que donnant une première estimation de la répartition des épaisseurs finale, demande de connaître la trajectoire que prendra chaque zone de la préforme. Comme illustré par les **figures 3.39 et 3.22**, la préforme évolue de manière singulière aux temps (d) et les directions locales de déplacement ne sont pas intuitives et dépendent de la loi de comportement et de la pression de soufflage, entre autre. La simulation numérique

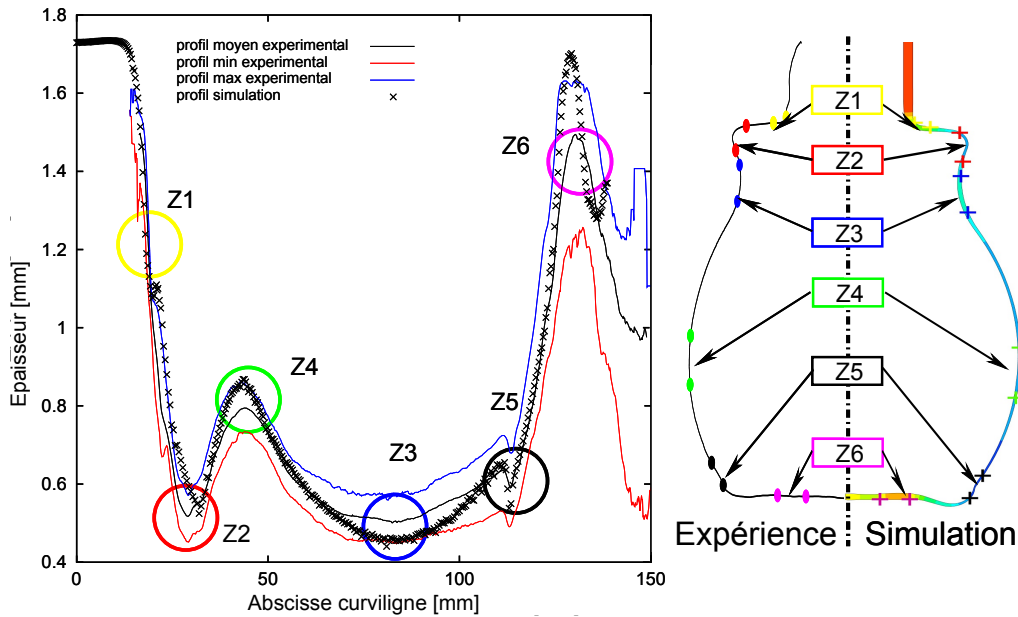


FIGURE 3.49 – Comparaison entre expérience (images obtenues par tomographie) et simulation

est donc essentielle à l'identification de ces trajectoires et s'avère donc indispensable pour qui veut dimensionner la préforme avec précision.

Le modèle est encore perfectible et de possibles sources d'erreur sont déjà identifiées.

La simplicité de la loi de comportement : une loi rhéofluidifiante type Cross n'est pas suffisante pour représenter le comportement total du polymère durant le procédé. La cristallisation peut intervenir, générant un renforcement local de la résistance de la préforme et modifiant alors l'évolution de la déformation de cette dernière. Cependant, le PPR3221 est un copolymère aléatoire dont les propriétés optiques ont été améliorées. C'est un semi-cristallin mais sa transparence est évidente. La formulation de ce polymère doit contenir des agents inhibiteurs de croissance des structures cristallines, amenant à considérer un matériau essentiellement amorphe qui serait chargé de petites particules cristallines, dont les tailles sont inférieures à la longueur d'onde du spectre du visible, permettant sa bonne transparence. De plus, les mesures DSC sous conditions isothermes et anisothermes ont montré que la cristallisation intervenant après soufflage et pas pendant le procédé.

L'analyse des composantes du tenseur des déformations vu en **sous-section 3.2.6** a mis en lumière la présence de cisaillement non négligeable durant le procédé, validant l'utilisation d'une loi rhéofluidifiante. Pour autant, la présente loi de comportement ne prend pas en compte un éventuel comportement non-linéaire sous sollicitations extensionnelles. Ces sollicitations extensionnelles ne sont pas à négliger, au contraire. Une loi de comportement mixte serait à utiliser, mais caractériser un polymère à l'état fondu en sollicitation extensionnelle n'est pas aisé.

La simplification de l'histoire mécanique et thermique avant soufflage est potentiellement source d'erreurs. Des contraintes résiduelles peuvent demeurer après la phase d'injection, et la répartition de température peut être différente de celle obtenue par la présente simulation. La température est pourtant cruciale pour définir la résistance locale de la préforme, car cette résistance dépend de la viscosité locale. Dans le cas où un modèle de cristallisation est considéré, la détermination de la



température se doit d'être aussi précise que possible.

La pression imposée, bien qu'évolutive, ne se base sur aucune mesure concrète. L'évolution imposée n'est donc pas forcément celle rencontrée dans le procédé. Une loi thermodynamique plus aboutie couplée à des mesures in-situ afin de la nourrir est ce vers quoi il faut tendre pour prétendre à un modèle prédictif.

Cependant, le modèle numérique présente les mêmes tendances que les mesures. L'étude de sensibilité a montré que, pour un procédé supposé sur-contraint de par sa géométrie, sa modélisation présente beaucoup de variabilités numériques. La loi de comportement, bien que simple, à une influence certaine sur les résultats d'épaisseurs comme l'a montré l'étude de sensibilité matériaux. L'énergie d'activation doit également être renseignée avec soin car, étant la clef de la thermodépendance de la viscosité, elle impacte directement l'influence du champ de température hétérogène initial sur l'évolution de la préforme. Ce champ de température initiale doit quant à lui être prédit le plus précisément possible, et il faut pour cela construire un modèle thermique robuste en identifiant les résistances de contact aux interfaces polymère/moule, les flux de chaleur fournis par l'outillage et les flux de chaleur s'échangeant avec l'environnement. La pression est également un paramètre procédé qu'il faut évaluer avec précision. Imposer une pression constante est trop brutal, mais imposer une pression évolutive demande des mesures in-situ afin d'évaluer le flux d'air dans le circuit permettant de souffler la préforme.

## Chapitre 4

# Optimisation numérique du procédé

## 4.1 Optimisation : principe et objectif

### 4.1.1 Étude bibliographique : Optimisation dans les procédés de soufflage

Une fois le comportement du matériau identifié et le modèle numérique mis au point, il est intéressant d'optimiser numériquement le procédé afin d'assister la conception de pièces et la mise au point du procédé. **Thibault et collab. (2007)** propose une optimisation de la géométrie de la préforme et des paramètres procédé dans le cas de l'injection-étirage-soufflage de bouteilles en PET. Une description mathématique de la géométrie de la préforme est utilisée. Un modèle de Christensen-Yang est choisi pour représenter le comportement mécanique du PET.

**Bordival et collab. (2009)** optimisent la répartition initiale des températures dans le procédé d'injection-étirage-soufflage de bouteille en PET. La préforme est chauffée par Infra-Rouge (IR) avant d'être étirée puis soufflée. Le logiciel de calcul par éléments finis ABAQUS est utilisé pour simuler le chauffage et l'étirage-soufflage. Un modèle thermodynamique est utilisé pour simuler l'évolution de la pression d'air en fonction de la variation du volume intérieur de la préforme. Un modèle de G'Sell-WLF est utilisé pour représenter le comportement du matériau. La pression simulée est en accord avec les pressions mesurées. L'optimisation a pour objectif une répartition d'épaisseurs finale homogène et utilise un algorithme de Nelder-Mead Généralisé pour modifier le champ de température initial. Dans **Lee et Soh (1996)**, il est proposé d'optimiser la répartition d'épaisseur dans le procédé d'extrusion soufflage. Un code de calcul par éléments finis est utilisé pour simuler le procédé et le comportement du matériau est représenté par un modèle hyperélastique de Mooney. Un schéma de Newton-Raphson, agrémenté d'un facteur de sous-relaxation pour faciliter la convergence et éviter les oscillations, est alors utilisé. **Yu et Juang (2010)** optimisent également la géométrie d'une bouteille mise en forme par extrusion-soufflage avec pour objectif de diminuer le poids de la pièce tout en assurant une tenue mécanique suffisante. L'optimisation a pour but de déterminer l'évolution optimale de l'entrefer de la filière au cours du procédé pour obtenir la pièce optimale in fine. Un algorithme génétique couplé à un modèle réseau évolué est utilisé. Ces résultats sont comparés avec ceux obtenus avec une méthode de Taguchi, dont les résultats sont présentés dans **Yu et collab. (2004)**. **Cosson (2008)** optimisent les paramètres de vitesses d'étirage de canne d'étirage et le temps avant soufflage dans le procédé d'injection-étirage-soufflage en construisant la carte des déviations standard des épaisseurs obtenues par simulation par éléments naturels contraints de la mise en forme de bouteille en PET. Le couple de paramètres optimal est obtenu là où la déviation est minimale.

### 4.1.2 Optimisation du procédé

L'optimisation de la géométrie de la préforme suit le principe décrit dans la **figure 4.1**. La géométrie initiale est contrôlée via des points de conception répartis le long de la préforme. Le modèle numérique décrit précédemment est lancé et la géométrie finale du produit soufflé est testée. Si la géométrie finale ne satisfait pas

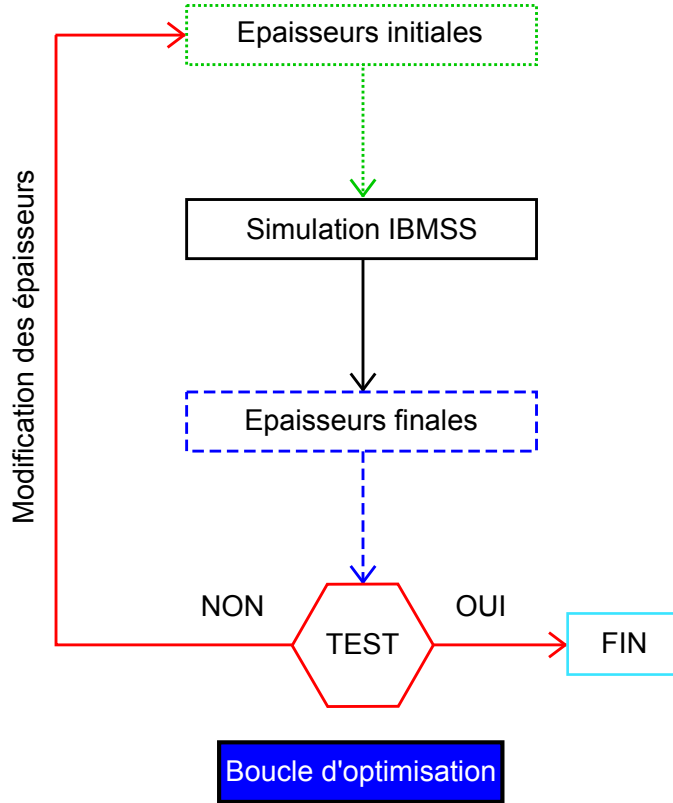


FIGURE 4.1 – Principe de l’optimisation du procédé - petits tirets pour les paramètres d’entrée de la boucle - lignes pleines pour le calcul numérique - tirets épais pour les sorties testées de la boucle

à l’objectif défini dans l’optimisation, la géométrie initiale est alors modifiée et le modèle numérique relancé pour souffler cette nouvelle préforme.

Une fois la géométrie finale en accord avec l’objectif fixé, l’optimisation est accomplie.

Pour ces travaux, l’objectif est défini comme l’obtention d’une répartition d’épaisseurs finale uniforme. Seules les épaisseurs dans la hauteur de la préforme sont optimisées. Il n’y a pas de points de conception définis en fond de bouteille et au goulot. Différents points de contrôle sont placés le long de la hauteur de la préforme. Le bord interne de la préforme, représenté par la surface externe du noyau, est fixé. Seules les distances locales entre le noyau et le bord externe de la préforme sont définies comme paramètres d’entrée du problème. Les points correspondant à ces distances doivent être suivis au cours de la simulation, afin de lier la bonne épaisseur locale finale au point de conception correspondant, afin de permettre le calcul de la bonne correction à appliquer localement à la géométrie initiale pour initier l’itération suivante. Pour ce faire, des sondes peuvent être définies dans POLYFLOW afin de suivre les déplacements matériels. Dans notre cas, du fait de l’utilisation de la méthode de remaillage Lagrangienne, les nœuds sur le bord externe de la préforme suivent de manière effective les déplacements matériels.

La fonction objectif à minimiser est définie pour la  $n$ -ième itération comme suit :

$$F_{\text{obj}}^n = \sum_{i=1}^N \sqrt{(e_{i,\text{final}}^n - e_{i,\text{cible}})^2} \quad (4.1)$$

avec  $N$  le nombre de points considérés dans le problème d'optimisation,  $e_{i,\text{final}}^n$  l'épaisseur finale calculée au  $i$ -ième point le long de la préforme et  $e_{i,\text{cible}}$  l'épaisseur finale définie comme objectif pour le  $i$ -ième point.

Pour cette étude, chaque épaisseur objective est définie à la même valeur pour que l'optimisation tende vers une répartition d'épaisseur uniforme :  $e_{i,\text{cible}} = e_{\text{cible}}$  pour  $i = 1..N$ .

Deux algorithmes différents sont testés pour résoudre la boucle d'optimisation appliquée à la géométrie flacon, le matériau considéré est le PPR3221 obéissant à une loi de Cross/Arrhénius.

## 4.2 Algorithme du Simplexe

### 4.2.1 Principe de l'algorithme du Simplexe

**Press et collab. (1994)** présentent dans leur livre intitulé "Numerical Recipes in Fortran" la méthode dite du "Downhill Simplex". Pour un problème à  $n$  dimensions, la méthode nécessite  $n+1$  points pour s'initialiser. Cette étape va définir une zone fermée -ou simplexe- dans l'espace à  $n$  dimensions du problème.

Par exemple, dans un problème à deux variables, l'initialisation de la méthode dessinera un Simplexe à trois points, soit un triangle, dans l'espace 2D du problème. Ensuite l'algorithme évalue le point où la fonction à minimiser est la plus haute et va estimer le point situé dans la direction opposée. Si cette recherche mène à une valeur encore plus grande de la fonction objectif, alors le Simplexe est réduit. Si le Simplexe est trop réduit, il est alors dégénéré et l'algorithme ne peut converger. Une méthode similaire est utilisée par **Bordival et collab. (2009)** pour optimiser les températures le long de la préforme dans le procédé d'étirage-soufflage. Trois paramètres sont définis avec pour objectif l'obtention d'une répartition d'épaisseurs uniforme dans la pièce finale. Ils utilisent la méthode proposée par **Luersen et Riche (2004)**, qui consiste à ajouter un redémarrage probabiliste à la méthode de Nelder-Mead classique, permettant à l'algorithme d'aller au delà des problèmes de dégénérescence afin de rechercher le minimum de la fonction objectif. Cette méthode intègre des contraintes, afin d'éviter de tester la fonction objectif sur des points irréalistes, de la même manière que **Bordival et collab. (2009)** ont contraint leurs températures entre la température de transition vitreuse et la température de cristallisation de leur matériau.

La méthode du "Downhill Simplex" utilisée ne comporte pas de redémarrage probabiliste. Le Simplexe est initialisé une fois. S'il dégénère, il est possible de le réinitialiser à partir du dernier meilleur point connu. Des contraintes sont ajoutées afin que les épaisseurs varient sous contrôle et d'éviter de trop brusques variations dans le maillage, ce qui le déstructurerait.

L'algorithme du Simplexe est à envisager en premier lieu car il ne nécessite pas de dériver la fonction objectif. Il est très général et s'applique à tout type de géométrie et paramètres procédé. Le Simplexe, basé sur la connaissance du point où la fonction objectif a la plus grande valeur, peut explorer l'espace à  $n$  dimensions selon quatre mouvements :

- réflexion dans la direction opposée aux points de plus haute fonction objectif ;

- si cette première exploration conduit à une valeur de la fonction inférieure à la plus grande connue, alors le Simplexe va évaluer la fonction encore plus loin dans cette direction ;
- si cette première exploration conduit à une valeur plus grande que la plus grande connue, alors le Simplexe se contracte et se placera entre le point le plus haut et ce dernier point exploré ;
- si la fonction objectif à ce dernier point n'est pas plus basse que la plus grande valeur connue, le Simplexe va se réduire autour de la valeur la plus basse connue ;

À part le mouvement d'expansion, les autres mouvements conduisent à une diminution de la taille du Simplexe. Si cette diminution est trop importante, le Simplexe ne peut explorer de manière efficace l'espace à  $n$  dimensions. Il est alors dégénéré. Un autre défaut à cette méthode est le fait que plus il y a de variables, plus grande est la probabilité que le Simplexe dégénère. Réinitialiser le Simplexe après dégénération peut être utile mais la probabilité qu'il dégénère à nouveau est grande.

### 4.2.2 Résultats de l'algorithme du Simplexe

Pour diminuer le risque de dégénérescence du Simplexe, l'optimisation de la géométrie est réalisée à partir de quatre points de conception. Les épaisseurs des points compris entre deux points de conception successifs sont interpolées à partir des épaisseurs modifiées aux points de conception. Les interpolations d'ordre un (P1), deux (P2) et trois (P3) ont été testées et les résultats sont présentés dans le **tableau 4.1**. Le degré d'interpolation ne paraît pas influencer de manière significative les résultats.

TABLE 4.1 – Résultats de l'algorithme "Downhill Simplex" :

Paramétrisation	Gain [%]	Nombre d'itérations	Temps écoulé
14 points	55	344	175h
4 points + P1	83	56	28h
4 points + P2	78	55	27h30min
4 points + P3	74	61	30h30min

## 4.3 Algorithme "Prédicteur/Correcteur"

### 4.3.1 Principe Prédicteur/Correcteur

La méthode Prédicteur/Correcteur repose sur le fait de considérer chaque point de conception comme un problème individuel. Les épaisseurs finales sont comparées aux épaisseurs cibles et les épaisseurs initiales sont corrigées en conséquence. Cette méthode nécessite de connaître la localisation de chaque point de contrôle dans la configuration finale (après soufflage). Le principe de cette méthode est illustré **figure 4.2**.

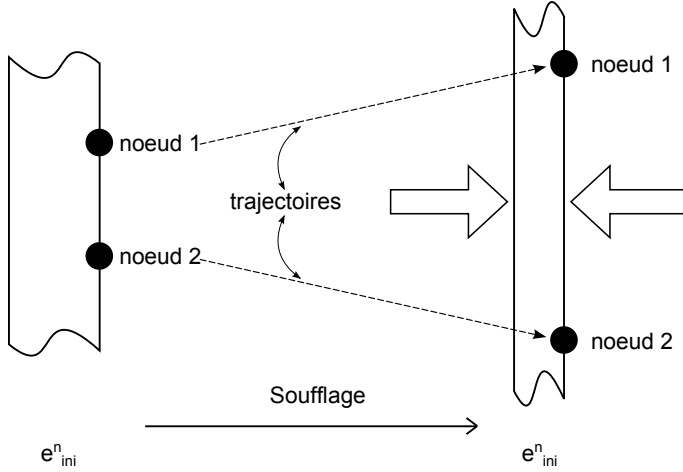


FIGURE 4.2 – Illustration du problème local

L'épaisseur initiale corrigée pour la prochaine itération est définie comme suit :

$$e_{\text{initial}}^{n+1} = e_{\text{initial}}^n + \alpha_{\text{relax}}(e_{\text{final}}^{\text{obj}} - e_{\text{final}}^n) \frac{e_{\text{initial}}^n}{e_{\text{final}}^n} \quad (4.2)$$

avec  $e_{\text{final}}^{\text{obj}}$  l'épaisseur objectif,  $\frac{e_{\text{initial}}^n}{e_{\text{final}}^n}$  l'étirage local.  $\alpha_{\text{relax}}$  est un terme de relaxation obéissant à la loi :  $\alpha_{\text{relax}} = (\frac{1}{2})^C$ .  $C$  est initialement égal à zéro.

Quand  $F_{\text{obj}}^{n+1} > F_{\text{obj}}^n$  alors  $C = C + 1$ . La prochaine itération reprend alors la géométrie de départ de la  $n$ -ième solution avec le nouveau terme de relaxation pour la correction.  $C$  est incrémenté chaque fois que  $F_{\text{obj}}^{n+1} > F_{\text{obj}}^n$ . Dès que  $F_{\text{obj}}^{n+1} < F_{\text{obj}}^n$ , sa valeur est remise à zéro.

### 4.3.2 Résultats Prédicteur/Correcteur

Les résultats pour cette méthode sont disponibles dans le **tableau 4.2**. La convergence de cet algorithme est meilleure que celle de Nelder-Mead. Plus important, la vitesse de convergence ne se dégrade pas quand le nombre de points de conception augmente.

TABLE 4.2 – Résultats de l'algorithme Prédicteur/Correcteur :

Paramétrisation	Gain [%]	Nombre d'itérations	Temps écoulé
14 points	97	15	7h30min
18 points	99	15	7h30min

La **figure 4.3** représente l'évolution de la convergence de cet algorithme. L'efficacité de la méthode est avérée : la première itération présente le gain le plus important sur la fonction objectif, puis le gain diminue dans les dernières itérations. à la huitième itération, la fonction objectif augmente, conduisant à une augmentation du coefficient de la loi de relaxation  $C$ . Lorsque l'itération suivante amène une diminution de la fonction objectif, le coefficient  $C$  est réinitialisé. Après cette itération, la fonction objectif ne cesse d'augmenter, et le coefficient  $C$  augmente en

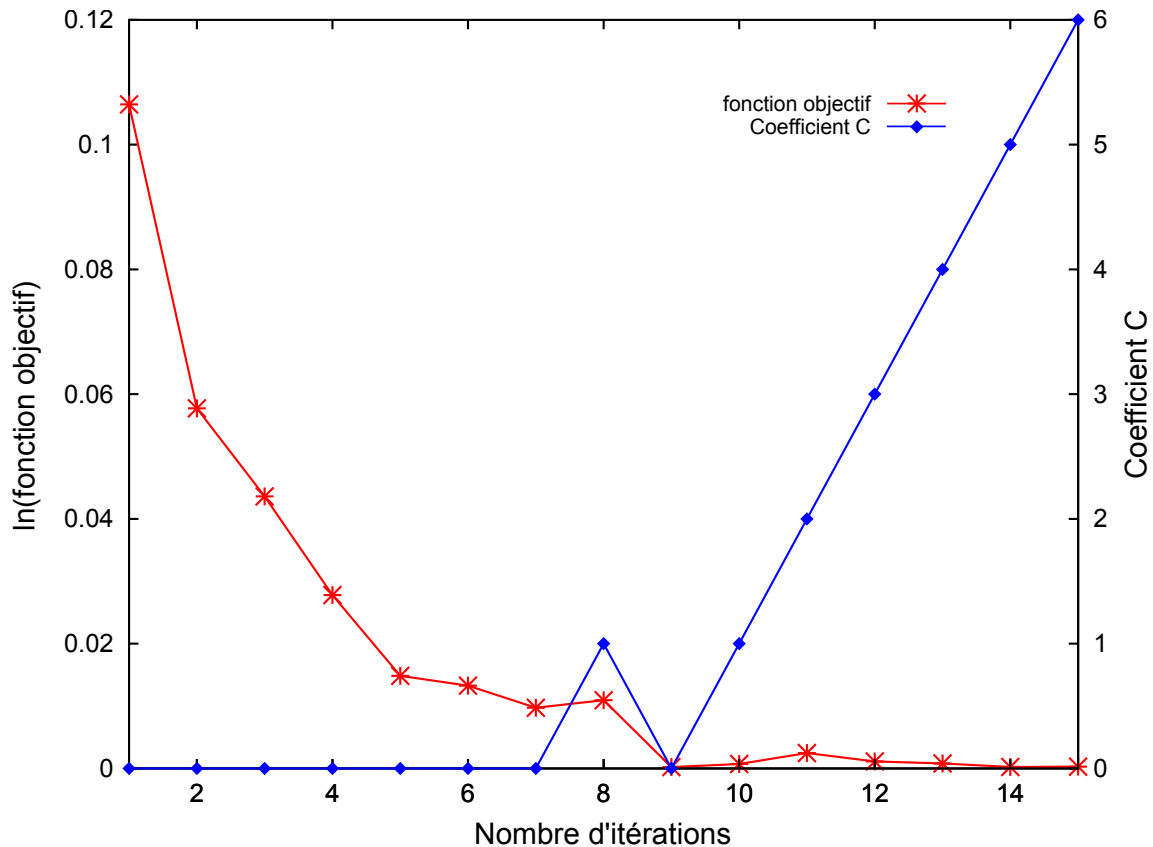


FIGURE 4.3 – évolution de la fonction objectif (axe de gauche - échelle semi-logarithmique) et évolution du coefficient C de la loi de relaxation (axe de droite)

conséquence. La neuvième itération est donc celle offrant la solution optimale, car la fonction objectif y est à son minimum.

La **figure 4.4** compare les épaisseurs finales et initiales de la géométrie brute et de la géométrie optimisée à l'aide de l'algorithme "Prédicteur/Correcteur". Il apparaît que l'optimisation a uniformisé la répartition d'épaisseurs finale. Au voisinage du fond de bouteille, de l'indice 50 à l'indice 80, l'optimisation des épaisseurs n'est pas un franc succès. Ceci est un effet de bord. Ces régions correspondent aux limites du problème d'optimisation au-delà desquelles il n'y pas de points de conception définis. Le même effet est visible au voisinage du goulot, de l'indice 230 à l'indice 250. Ces zones ne sont pas prises en compte dans l'optimisation car elles sont avant soufflage déjà en contact avec le moule. Ceci n'a que peu d'influence car, d'un point de vue pratique, le goulot est figé car non soufflé, et est simplifié dans la géométrie simulée. L'optimiser n'aurait donc pas de sens. Concernant le fond de bouteille, son optimisation est également discutable car il faut que l'épaisseur à cet endroit soit conséquente pour assurer une bonne tenue de la bouteille. Mais le fait que les épaisseurs dans ces zones soient figées conduit à des effets de bord, car les points de conception à ces limites sont en minorité et l'effet de la modification des épaisseurs initiales à leur endroit est limité.

La grande variation d'épaisseur au voisinage du maximum (index 75), dans la répartition d'épaisseurs initiale optimisée souligne la difficulté d'obtenir une répartition d'épaisseurs uniforme dans le procédé. Ce pic n'est pas un pur effet numérique mais une conséquence de la géométrie. Il apparaît à l'endroit où la préforme est le



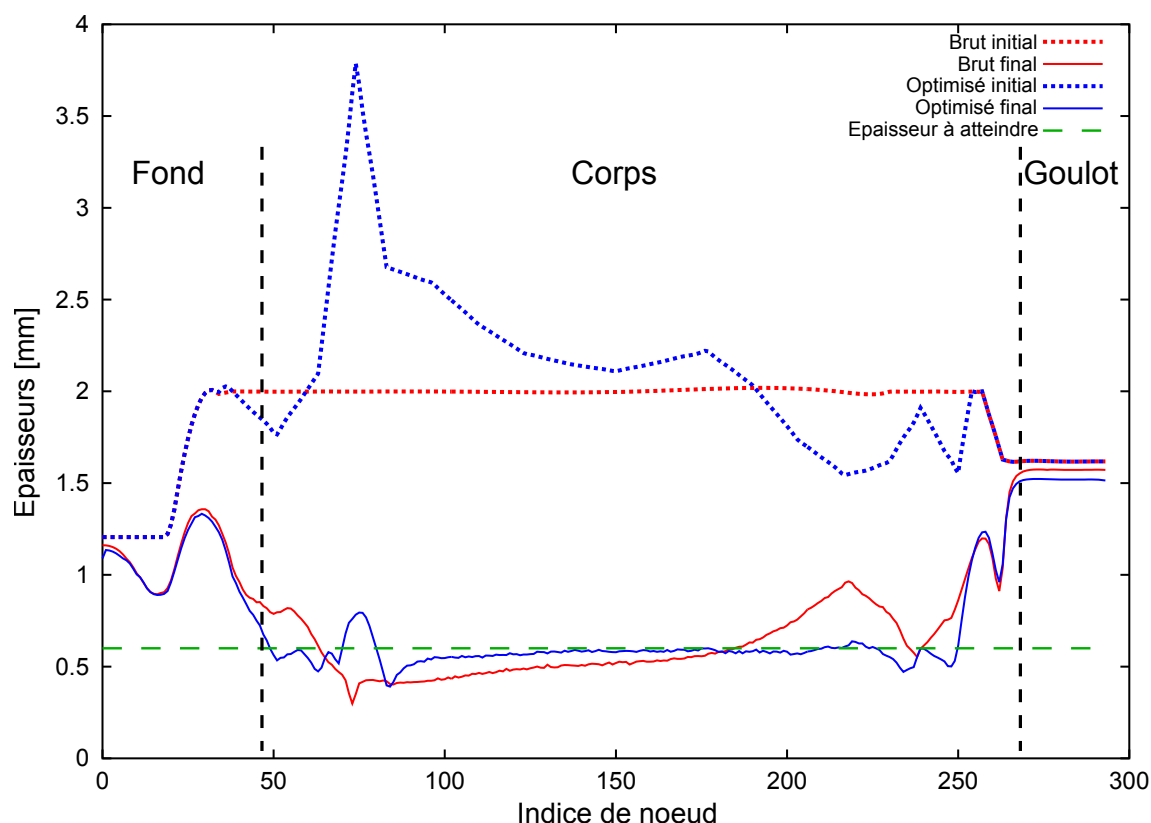


FIGURE 4.4 – Profil optimisé (bleu) versus profil brut (rouge)

plus étiré pendant le soufflage. Cet effet apparaît également dans les résultats d'optimisation de l'algorithme "Downhill Simplex". Usiner un moule présentant cette forte variation d'épaisseur ne serait pas avisé et le moulage de la préforme puis le soufflage souffrirait de ce gradient. Ceci amène la nécessité de définir des limites au problème, en accord avec la faisabilité du moule de la préforme (précision des machines d'usinage) et en considérant les conséquences qu'entraînent de telles variations d'épaisseurs.

Il serait intéressant, à l'avenir, de déterminer une répartition d'épaisseurs finale optimale à l'aide d'une première boucle d'optimisation, comme présenté dans la **figure 4.5**. L'objectif de cette première boucle serait de minimiser le poids de la pièce finale tout en conservant une résistance globale de celle-ci suffisante pour résister à un chargement donné. Cette boucle d'optimisation pourrait être lancée en utilisant le code de calcul par éléments finis de résistance des matériaux contenu dans l'environnement de travail d'ANSYS Workbench. L'algorithme "Downhill Simplex" serait alors plus adapté pour cette première boucle car les directions de correction ne sont pas aussi évidentes que dans le problème d'optimisation des épaisseur dans le procédé de soufflage. Le résultat de cette première boucle servirait alors d'objectif à la deuxième boucle d'optimisation visant à déterminer la répartition d'épaisseurs initiale optimale de la préforme permettant d'obtenir la pièce finale optimisée.

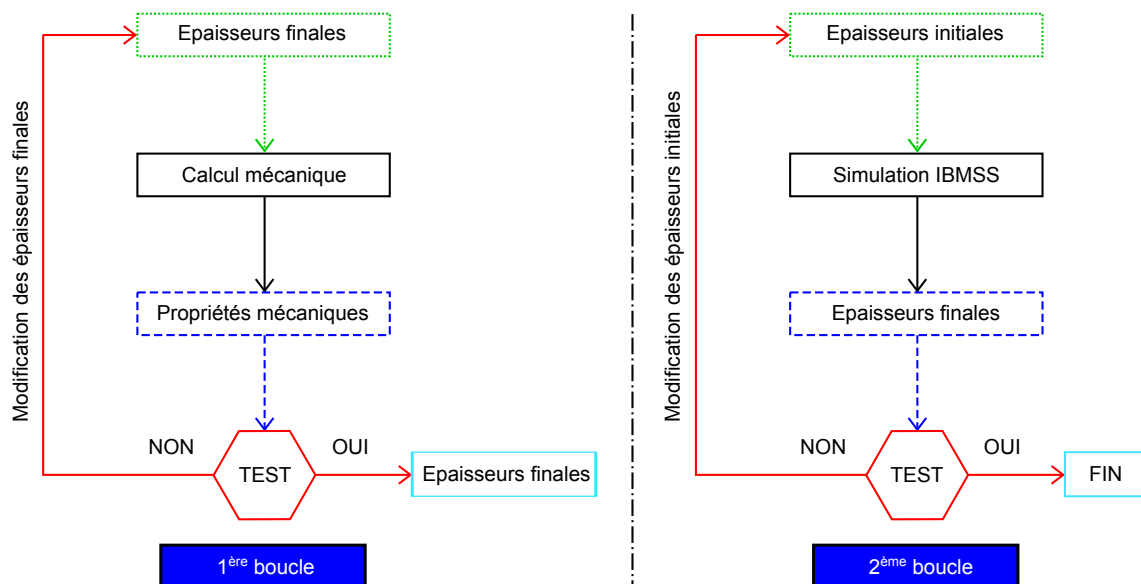


FIGURE 4.5 – Principe de l'optimisation complète



# Chapitre 5

## Perspectives : Développement de l'extensométrie optique

### 5.1 Introduction

Comme il a été présenté, le procédé IBMSS étudié et développé dans le cadre du projet IS<sup>2</sup> souffle le polymère quand il est encore à l'état fondu. Une caractérisation du matériau dans le domaine fondu est donc de mise.

Mais concernant le procédé de soufflage plus classique qu'est l'ISBM, la préforme est chauffée à une température inférieure à la température de fusion après avoir été stockée, et donc avoir refroidi. Dans ce cas, la caractérisation du matériau doit se faire en partant du domaine solide.

C'est avec cette problématique en tête qu'un système d'extensométrie optique, avec enceinte thermique, a été développé au cours de ces travaux de thèse. L'objectif étant de se donner les moyens de pouvoir caractériser en extension, à partir de l'état solide, et à différentes températures, des matériaux qui seront rencontrés dans les travaux futurs de soufflage.

### 5.2 Conception de l'enceinte et des mors

Durant ces travaux de thèse, une enceinte thermo-régulée a été conçue afin de s'adapter à la machine de traction présente sur le site de Plasturgie de l'INSA Lyon à Oyonnax. Un système d'extensométrie a été développé en parallèle, permettant le suivi des déplacements locaux par corrélation d'image en temps réel. Le principal intérêt du développement de ces deux technologies est d'étendre les capacités de caractérisation des matériaux aux mesures de grandes déformations par extensométrie en traction uni-axiale à différentes températures.

L'enceinte thermo-régulée est conçue de telle sorte à pouvoir suivre la plus grande déformation possible. Pour ce faire, un système d'enceintes imbriquées a été imaginée. Une première enceinte interne est fixe par rapport à la platine de la machine de traction (partie basse) tandis que l'enceinte externe suit le déplacement de la traverse. Les faces de chacune des enceintes sont vitrées afin de permettre la visualisation de l'échantillon au cours de l'essai. Le déplacement relatif de l'enceinte

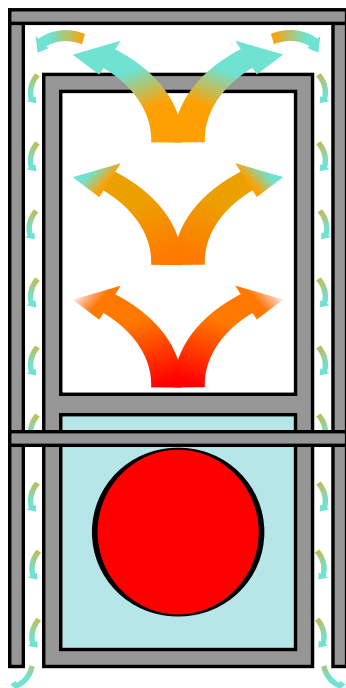


FIGURE 5.1 – Principe de la circulation de l'air chaud dans l'enceinte

externe par rapport à l'enceinte interne ne vient pas perturber la mesure d'effort lors de l'essai, le capteur n'étant relié que par le mors à l'échantillon et l'enceinte externe étant immobile par rapport au mors haut. L'air chaud est apporté par l'utilisation d'un décapeur modifié afin d'éviter toute surchauffe de ce dernier. L'entrée de l'air chaud s'opère en bas de l'enceinte interne, sur la face arrière.

La **figure 5.1** illustre le principe de chauffe de l'enceinte ainsi conçue.

Avec l'enceinte ainsi conçue, des mors spécifiques ont été conçus, permettant le serrage des éprouvettes en présence des enceintes depuis l'extérieur des enceintes.

Les mors ont été conçus pour être auto-serrant, puisque l'éprouvette sous grande déformation risque de se déformer en partie dans les mâchoires des mors. L'adjonction d'un ressort dans le système des mors permet d'assurer cet auto-serrage. Un dimensionnement des ressorts est nécessaire afin d'améliorer cette propriété. Les différentes phases de conception ont été réalisées durant ces travaux de thèse, tandis que la fabrication des mors a été réalisée par l'entreprise locale TF Étude (01590 Dortan).

La **figure 5.2** présente les grandes étapes de la réalisation des mors.

La première version des mors a été chiffrée à 4700€. Par la suite, les mâchoires ont été redéfinies pour mieux mordre les échantillons, pour un chiffrage de 680€. En fonctionnement, le serrage s'effectuait par un rapprochement des mâchoires mais également par un déplacement vertical. Une dernière modification, chiffrée à 3000€, a été réalisée afin de ne récupérer que la composante horizontale du déplacement des mâchoires afin d'éviter la mise en compression des éprouvettes avant essais. La dernière modification a également permis de développer un système évitant la mise en torsion de l'échantillon lors du serrage. La procédure à suivre consiste à serrer tout d'abord l'échantillon dans le mors du bas, puis de faire descendre la traverse au niveau de la partie haute de l'échantillon. Le serrage du mors haut est effectué. Dans la première version, cette deuxième phase de serrage entraîne une mise en torsion

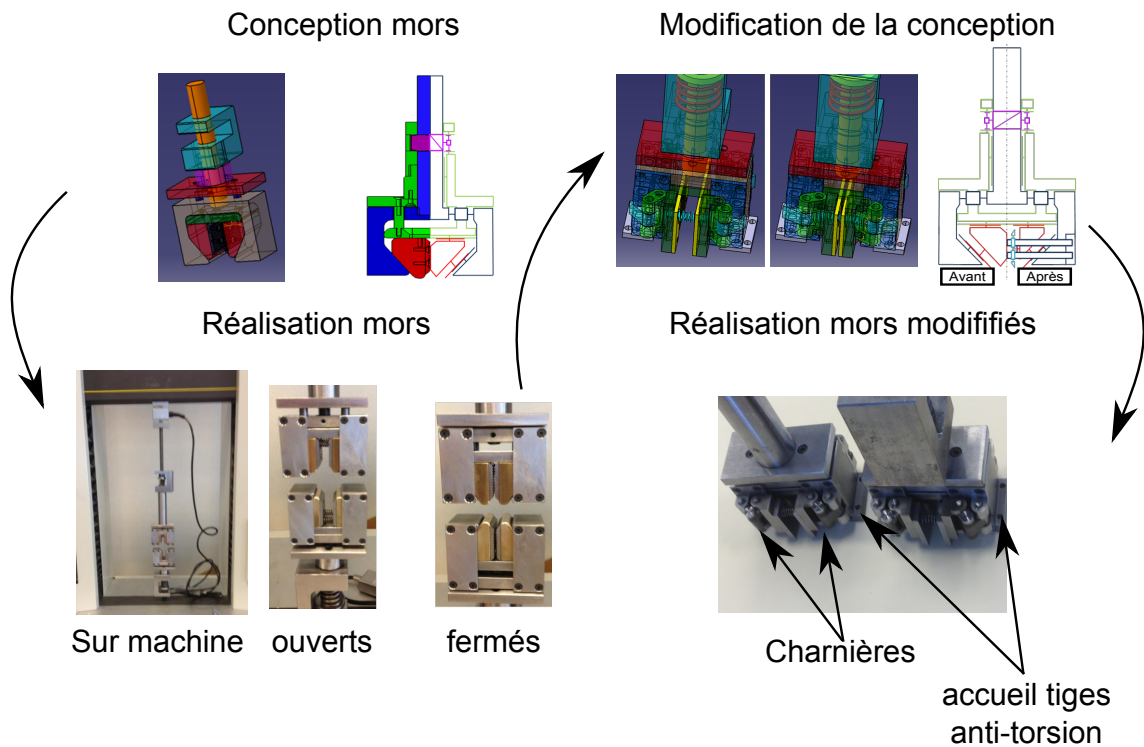


FIGURE 5.2 – Principales étapes de la conception des mors

de l'échantillon, le mors haut pivotant durant le serrage tandis que le mors bas reste fixe. Le dispositif anti-torsion permet de rendre solidaire le mors haut et le mors bas via quatre tiges traversantes. Les mors sont alors solidaires et l'échantillon ne subit aucune sollicitation autre que le serrage des mâchoires.

Plusieurs tests de montée en température ont été réalisés.

### 5.3 Montée en température de l'enceinte

La montée en température dans l'enceinte a été testée sur l'enceinte seule tout d'abord, dans un lieu sécurisé (le pôle peinture Coating Expert). La **figure 5.3** illustre le montage réalisé lors de ces essais.

Les sondes de température lors de cet essai sont placées à une hauteur à peu près équivalente, mais elles sont plus ou moins éloignées du centre de l'enceinte. La **figure 5.4** présente leurs positionnements lors de l'essai. La sonde de régulation est maintenue dans les mâchoires du mors haut.

La température de consigne est fixée à 150°C. Les températures sont relevées au cours du temps. La **figure 5.5** présente les résultats de ce premier test.

Il apparaît que la température à l'endroit de la sonde T2 (la plus éloignée du centre de l'enceinte) est plus élevée que pour les deux autres sondes. La sonde T1 quant à elle indique des valeurs légèrement inférieures aux valeurs de la sonde de régulation, car plus proche d'une plus grande surface d'échange avec le mors. Ce dernier jouant le rôle de pont thermique, il est logique que la température à son voisinage soit plus basse que dans le reste de l'enceinte. La prise de température pour la régulation est réalisée dans les mâchoires, et la température de consigne y est atteinte au bout de 1000s (16min et 40s). Comme la zone à réguler est également

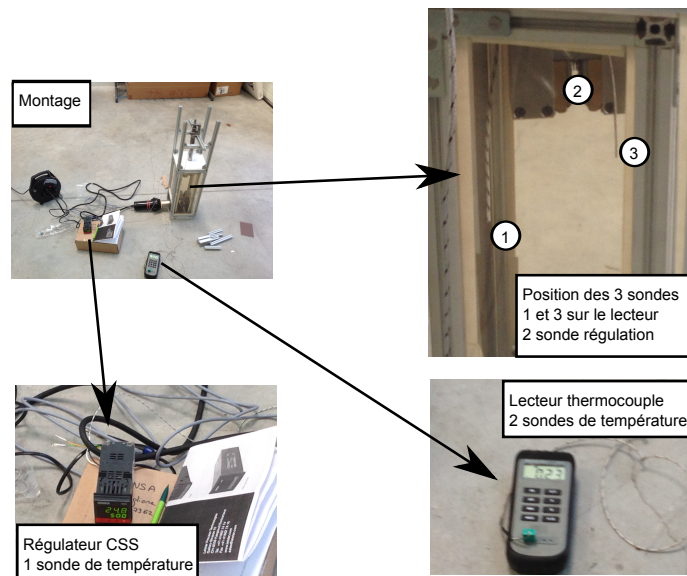


FIGURE 5.3 – Montage de l'expérience de montée en température de l'enceinte

la zone la plus froide, les zones éloignées du centre sont donc plus chaudes.

La **figure 5.6** présente une possible répartition de la température dans l'enceinte.

Le temps de régulation, supérieur à 16min, paraît trop long. Un réglage du PID est réalisé afin que la régulation soit plus réactive.

Suite à cet essai, le souffleur d'air chaud a été testé en situation d'essai de traction à 100°C. Au bout d'un quart d'heure, le souffleur a arrêté de souffler. L'électronique de ce dernier a surchauffé. Ceci a été imputé à un possible retour d'air chaud, le débit d'air entrant étant plus important que les fuites. L'air chaud refoulait donc dans le souffleur, conduisant à une surchauffe. Il a alors fallu envoyer en réparation le souffleur puis le modifier afin d'isoler l'électronique du retour d'air chaud. La partie de ventilation/électronique est dissociée de la partie chauffante/canon du souffleur d'origine. Afin de transporter l'air chauffé, une turbine est placée derrière le canon. Le débit de cette turbine paraît plus faible que le débit d'air du souffleur d'origine. De plus, ce débit peut être modulé via un potentiomètre.

Un deuxième test de la montée en température est alors réalisé sur la machine de traction afin de tester l'évolution de la température avec le souffleur modifié, et lorsque la traverse se déplace, et donc fait varier le volume interne des enceintes. La **figure 5.7** présente le montage de l'enceinte thermique sur la machine de traction.

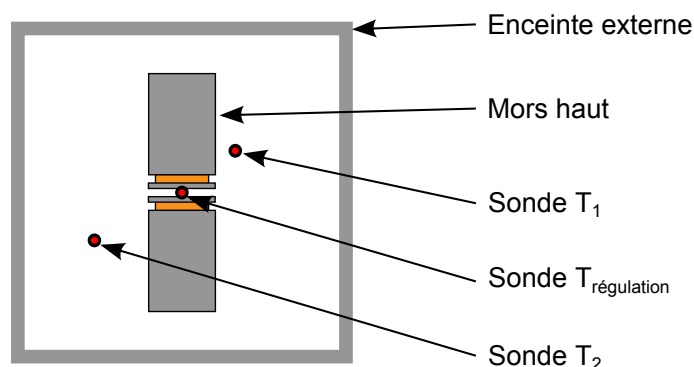


FIGURE 5.4 – Montage de l'expérience de montée en température de l'enceinte

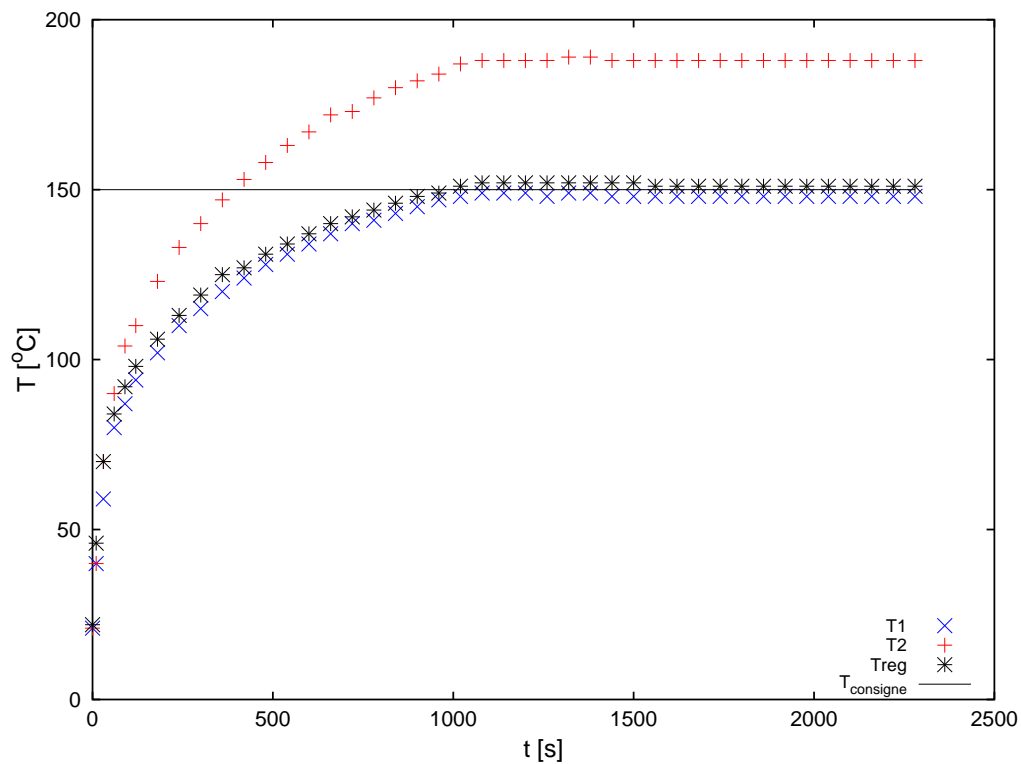


FIGURE 5.5 – Évolution de la température au cours du temps - trait plein noir : Température de consigne - croix obliques bleues : sonde T1 - croix droites rouges : sonde T2 - étoiles noires : sonde de régulation

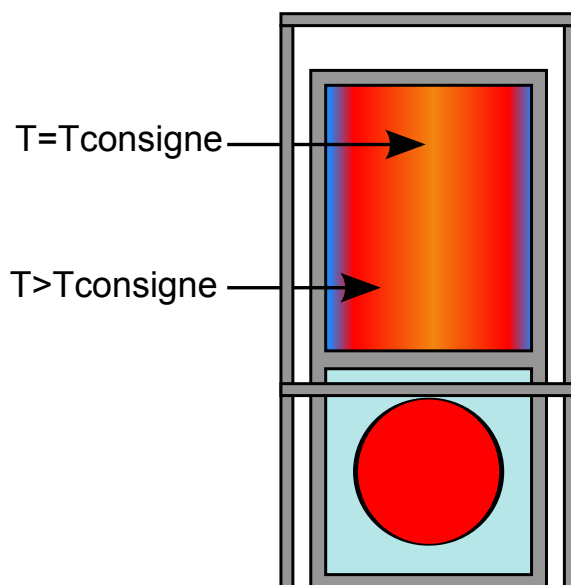


FIGURE 5.6 – Répartition des températures attendue dans l'enceinte



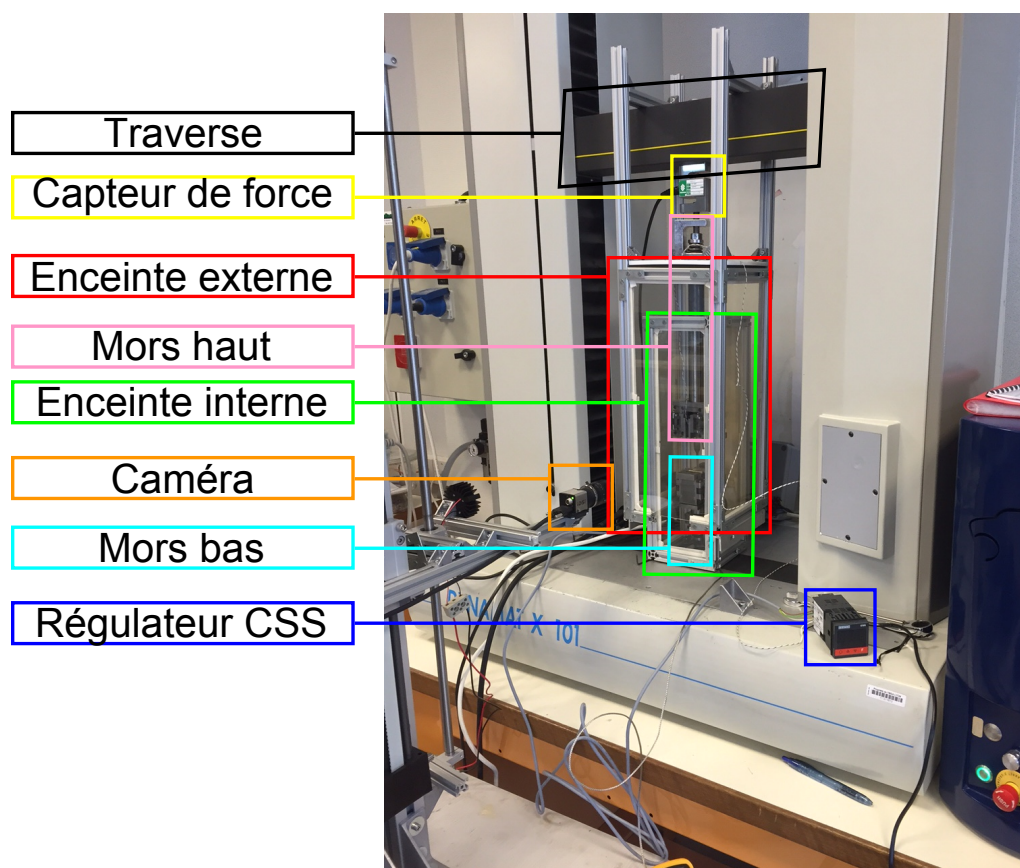


FIGURE 5.7 – Montage de l'enceinte sur la machine de traction avec le module d'extensométrie

La sonde de régulation est placée dans les mâchoires du mors du haut, la deuxième sonde de température est placée dans le mors du bas, à proximité de l'éprouvette en place. Le premier test réalisé consiste à suivre l'évolution de la température au niveau de la sonde pour une température de consigne fixée à 60°C. La traverse est à sa position initiale, avec une distance entre mors légèrement supérieure à la longueur de l'éprouvette (pour éviter que le mors du haut serrant la sonde de régulation ne vienne mettre en compression l'éprouvette). La **figure 5.8** présente l'évolution de ces températures.

Après avoir dépassé la température de consigne de plus de 20°C au bout d'une minute, la température diminue pour passer en-dessous de la consigne puis se stabiliser dès trois minutes. Passé 300s, la consigne a été augmentée à 100°C. À ce moment, la température décroît. Ceci est dû à l'arrêt de la turbine. Cette arrêt est dû à une sécurité de la turbine dont l'électronique a trop chauffé. Après une attente de plusieurs minutes, la turbine s'est remise en marche. Le débit de cette dernière a ensuite été réduit à son minimum pour diminuer les risques de refoulement d'air chaud. Le débit maximum n'est alors à utiliser que pour des chauffes rapides, mais le débit doit ensuite être diminué pour éviter des surchauffes et donc des arrêts de la turbine. À noter que la température au niveau du mors du bas est supérieure à la température de régulation. L'air chaud refroidit en montant et il est normal que la température en bas d'enceinte soit donc supérieure. L'enceinte s'est donc régulée, passant de 50°C à 100°C.

Un deuxième test consiste alors à fixer la consigne à 120°C puis d'attendre 5min.

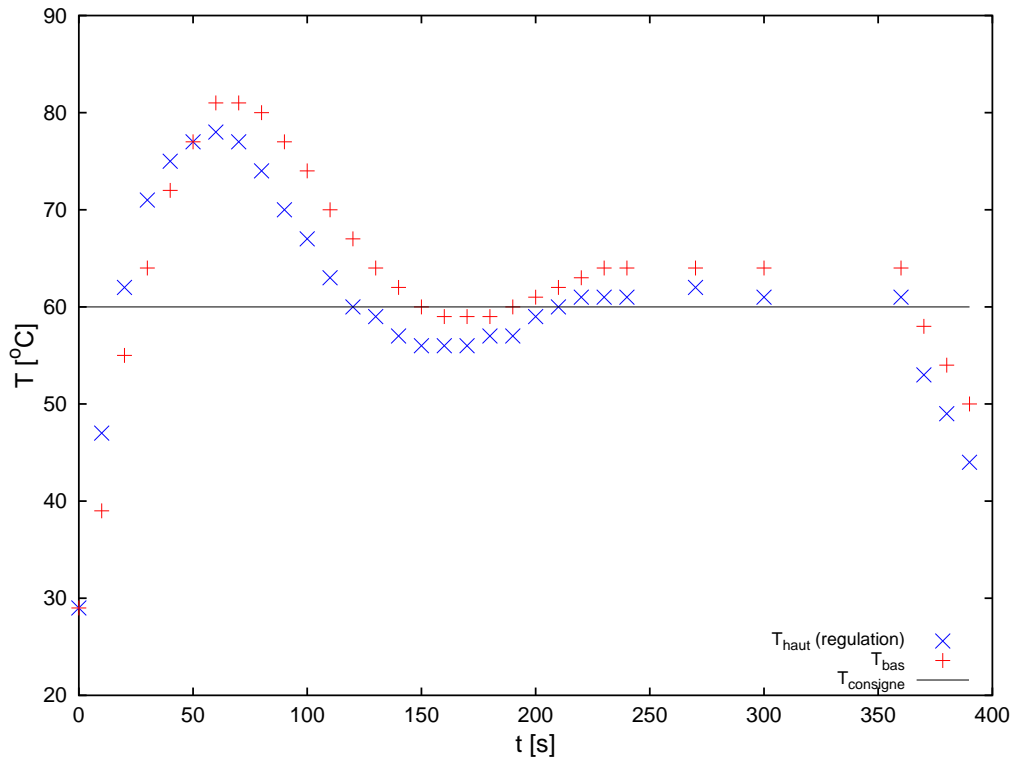


FIGURE 5.8 – Évolution des températures en fonction du temps - Consigne imposée à 60°C - Longueur initiale

La traverse se déplace alors à une vitesse de  $50\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ , faisant s'éloigner les mors et augmentant le volume d'air à réguler.

La **figure 5.9** présente l'évolution de ces températures. Celles-ci ont été mesurées passé les cinq minutes.

La température, passé cinq minutes, est supérieure à la température de consigne de 5°C. Elle passe ensuite en dessous de quelques degrés. La température au niveau du mors du bas suit les mêmes variations tout en étant supérieure à la température de régulation, ce qui est encore une fois attendu. Entre 450s et 530s, la température de régulation semble se stabiliser pour ensuite chuter, tandis que la température prise au mors du bas ne cesse d'augmenter. Ceci indique que l'énergie fournie par la régulation n'est pas suffisante pour augmenter la température au point de régulation et qu'elle augmente donc avec le temps, puisque la température en bas de l'enceinte augmente. Il se trouve que la traverse s'est alors déplacée de plus de 190mm. Cette distance est du même ordre que la hauteur de l'enceinte interne. Ayant parcouru cette distance, la configuration des enceintes présente une zone d'échappement d'air très importante et l'air chaud va plus facilement s'écouler vers cette zone de fuite, plutôt que circuler jusqu'en haut de l'enceinte externe et venir chauffer l'air à l'endroit de la sonde de régulation. La **figure 5.10** montre cette zone d'échappement d'air ainsi libérée.

Ensuite, la traverse a été descendue afin de diminuer le passage de l'air dans cette zone d'échappement préférentiel. La température initiale est alors de 70°C environ. La température de consigne est toujours fixée à 120°C. La traverse est initialement immobile puis est descendue à partir de sept minutes à une vitesse de  $50\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$ .

La **figure 5.11** présente l'évolution de ces températures.

La température au niveau du mors du bas diminue alors, tandis que la température

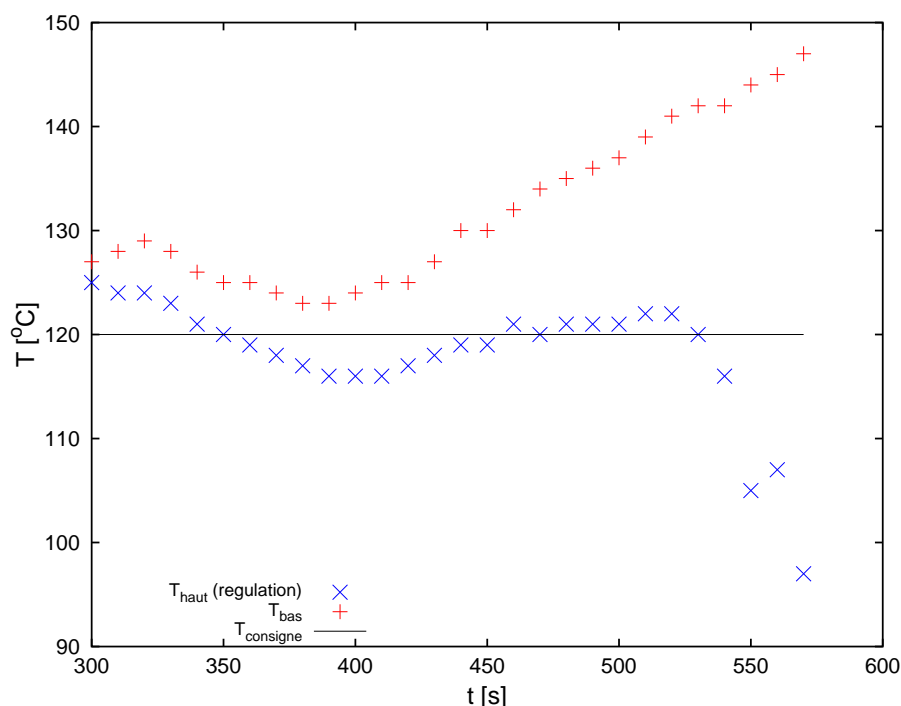


FIGURE 5.9 – Évolution des températures en fonction du temps - Consigne imposée à 120°C -  $V_{\text{traverse}} = 50\text{mm.min}^{-1}$

de régulation oscille autour de la consigne. Ceci suit bien la diminution du volume à réguler, donc la diminution de la température de l'air en entrée d'enceinte pour satisfaire à la consigne. Lors de la descente de la traverse, la sonde de régulation a mesuré des températures très supérieures à la consigne et à la température en bas de mors, de l'ordre de 250°C. Ceci peut être la signature de l'existence d'une zone chaude dans l'enceinte. Ce phénomène est à surveiller.

## 5.4 Premiers résultats d'extensométrie

Le suivi des déplacements par extensométrie repose sur le principe de corrélation d'image. L'échantillon doit alors être préalablement marqué. Le marquage est un mouchetis réalisé par projection de peinture noire. Avant l'essai, il faut placer des boîtes sur l'échantillon à partir du logiciel de suivi des déplacements. La taille et le placement des boîtes sont modulables. Chaque boîte correspond à un suivi des déplacements locaux du marquage. Les composantes des déplacements (x,y) sont enregistrées au cours de l'essai, de même que la force. Le logiciel d'extensométrie a été entièrement développé par Jean BALCAEN, technicien du site de plasturgie de l'INSA Lyon. L'intérêt d'un développement interne offre une souplesse certaine au logiciel et à la modification de celui-ci. En contre-partie, le temps de développement s'en trouve rallongé et il est nécessaire d'identifier les limites d'utilisation du dit logiciel.

La **figure 5.12** montre le placement des boîtes et les données brutes obtenues selon la direction y.

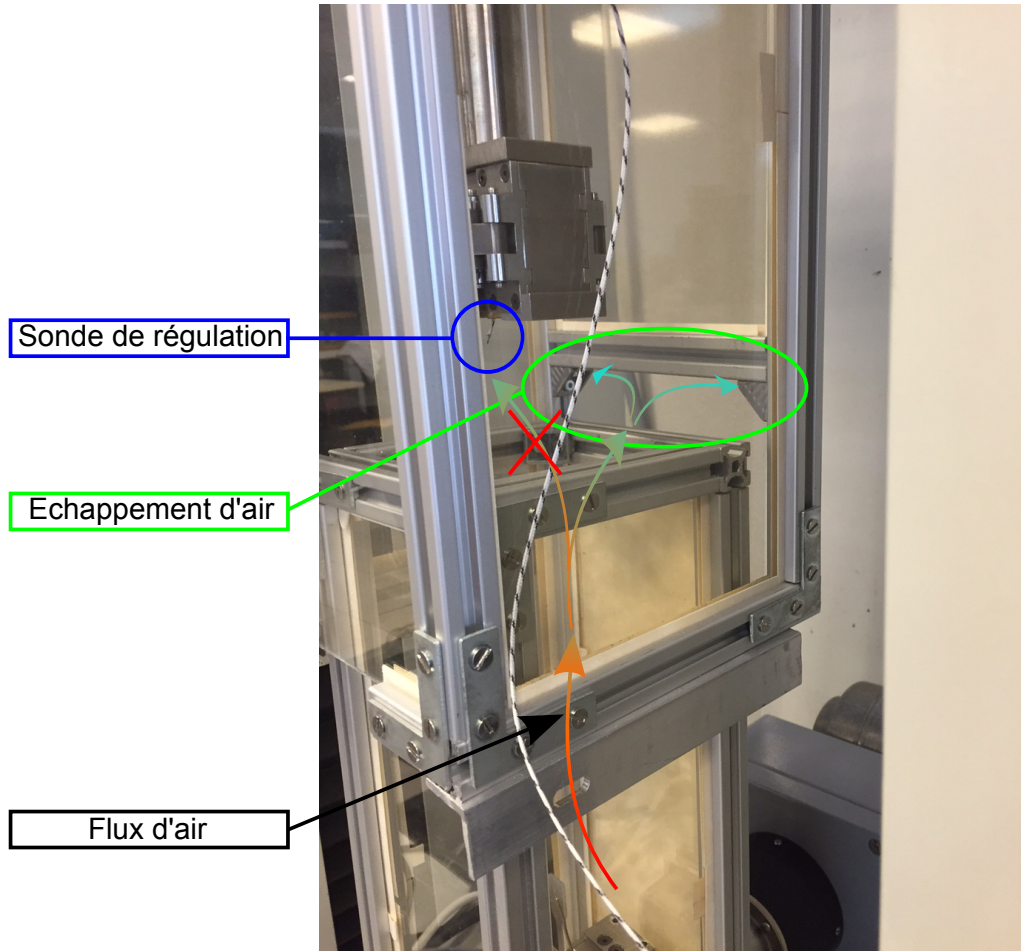


FIGURE 5.10 – Évolution des températures en fonction du temps - Consigne imposée à  $120^{\circ}\text{C}$  -  $V_{\text{traverse}} = 50\text{mm.min}^{-1}$

Suivant cette démarche, des essais de traction à différentes vitesses d'étirage ont été réalisés sur une éprouvette élastomère. L'intérêt de l'éprouvette élastomère est son retour élastique complet. Les essais sont réalisés sur la même éprouvette pour des vitesses de traverses de  $[5, 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50]\text{mm.min}^{-1}$  jusqu'à un déplacement de 25mm de la traverse. Dans cette étude, 100 boîtes sont placées sur l'éprouvette : 5 dans la largeur et 20 dans la hauteur. Il y a donc 100 analyses de corrélation d'images réalisées en temps réel.

Les **figures 5.13** et **5.14** présentent les résultats de mesures selon x et y respectivement.

La **figure 5.15** présente les mesures d'efforts pour les différentes vitesses d'étirage en fonction du temps.

En traçant ces efforts en fonction du déplacement de traverse **figure 5.16**, il apparaît que l'élastomère est peu, voir pas sensible, à la vitesse d'étirage et seul le déplacement de la traverse compte.

À partir de ces déplacements, les distances inter-boîtes sont calculées selon les axes x et y. Les déformations en sont déduites :

$$\epsilon_i = \ln \left( \frac{L_i(t)}{L_i(t_0)} \right) \quad (5.1)$$

avec  $\epsilon_i$  la i-ème déformation locale,  $L_i(t)$  la i-ème distance inter-boîte à l'instant

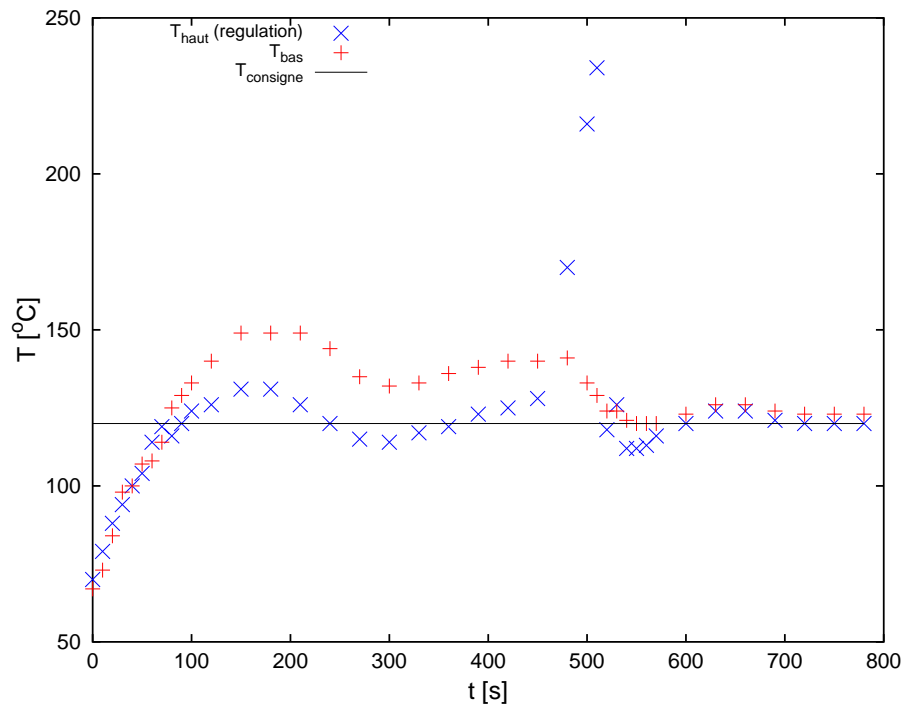


FIGURE 5.11 – Évolution des températures en fonction du temps - Consigne imposée à  $120^{\circ}\text{C}$  -  $V_{\text{traverse}} = -50\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$  à 7min

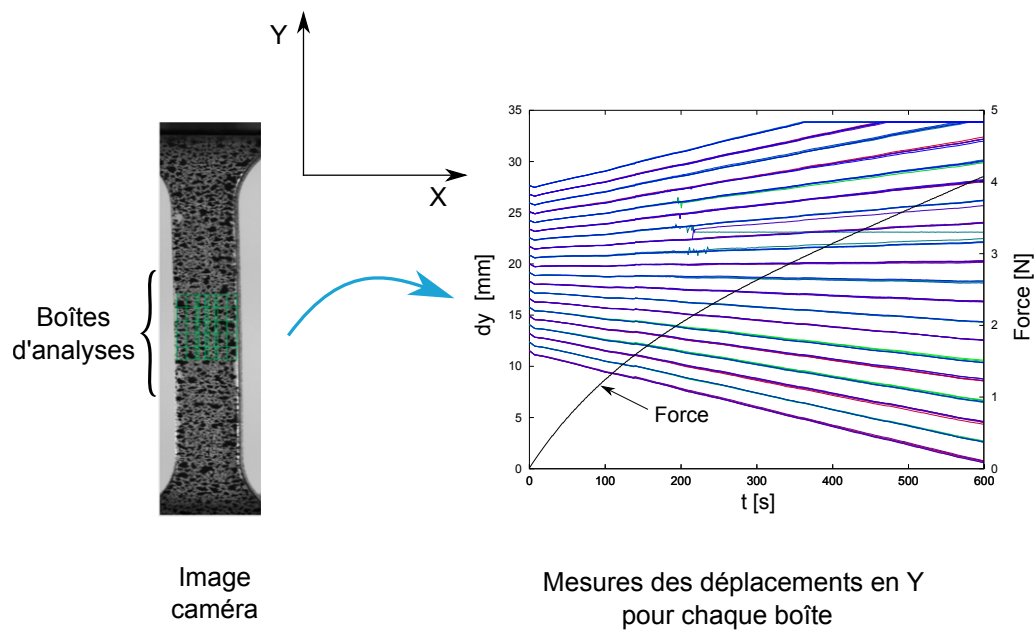


FIGURE 5.12 – Exemple de placement des boîtes et données mesurées selon l'axe y

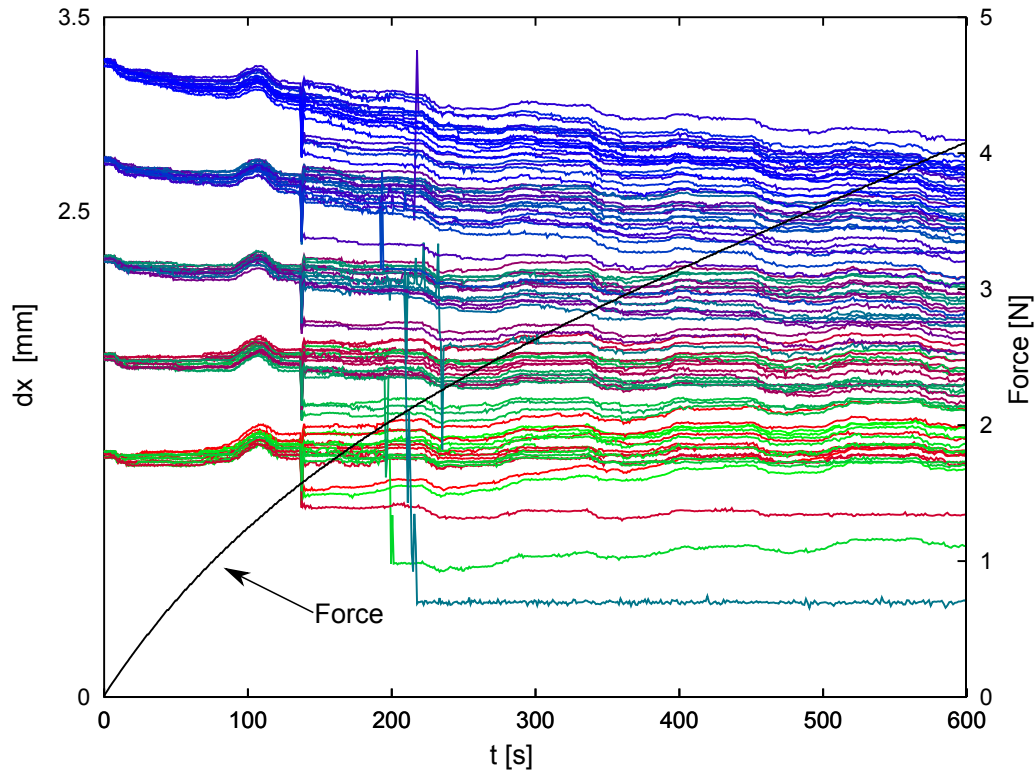


FIGURE 5.13 – Déplacements  $x$  mesurés au cours du temps sur 100 boîtes -  $5\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$  - caoutchouc naturel

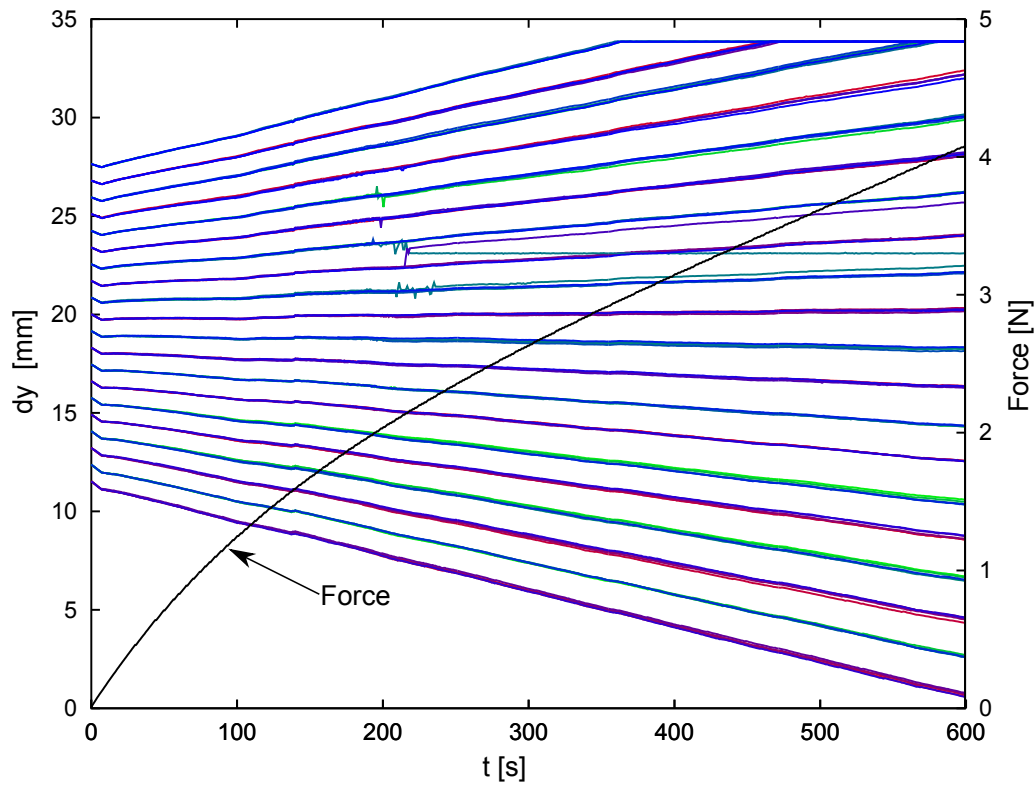


FIGURE 5.14 – Déplacements  $y$  mesurés au cours du temps sur 100 boîtes -  $5\text{mm}\cdot\text{min}^{-1}$  - caoutchouc naturel



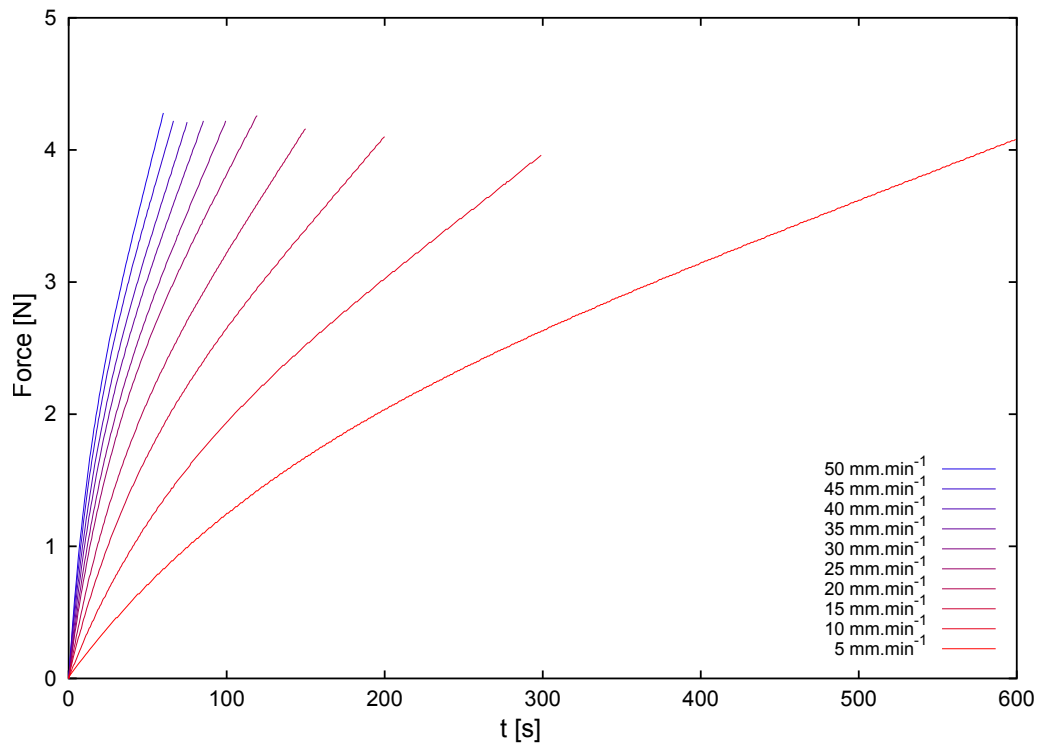


FIGURE 5.15 – Efforts en fonction du temps - différentes vitesses d'étirage - caoutchouc naturel

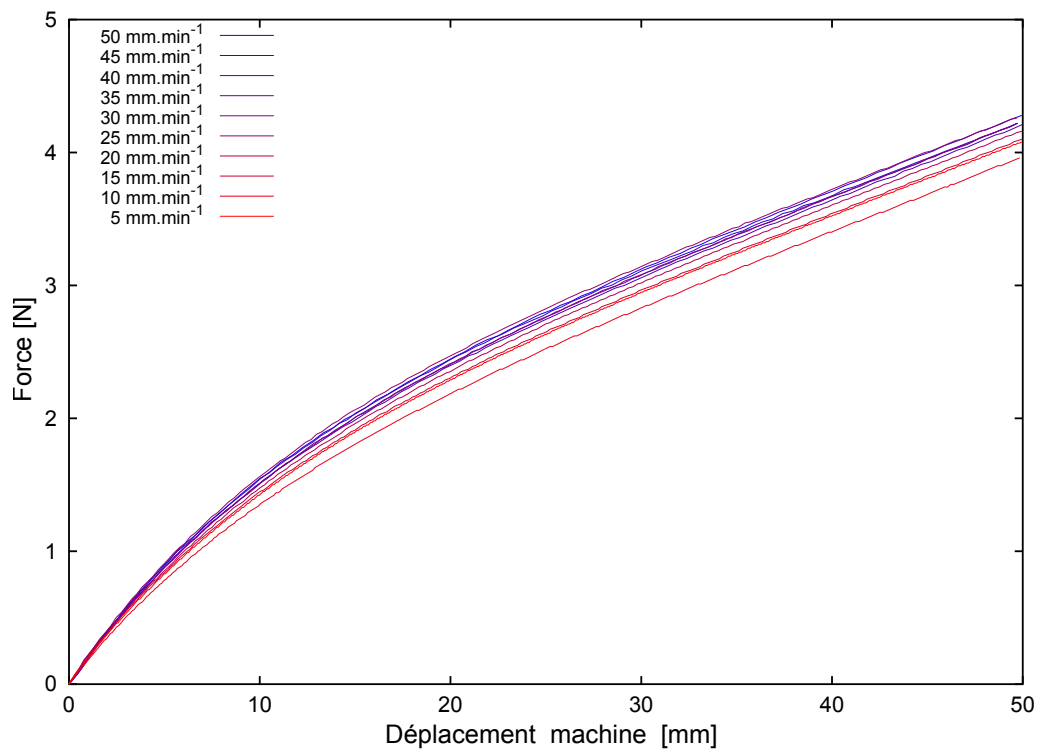


FIGURE 5.16 – Efforts en fonction du déplacement de la traverse - différentes vitesses d'étirage - caoutchouc naturel

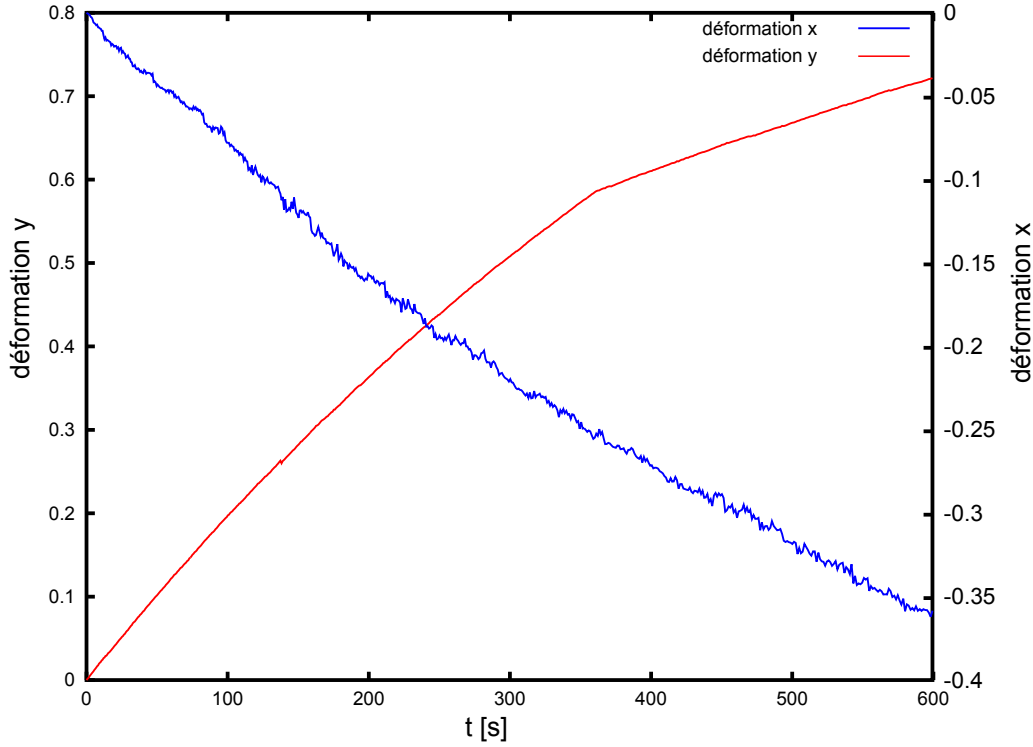


FIGURE 5.17 – Déformation médianes en fonction du temps - 5mm.min<sup>-1</sup> - caoutchouc naturel

$t$  et  $L_i(t_0)$  la  $i$ -ème distance inter-boîte à l'instant initial.

Une méthode de détermination du champs de déformation par une méthode par éléments finis serait plus élégante et sera développée dans de futurs travaux.

Un coefficient de Poisson médian peut alors être calculé à partir du rapport des déformations médianes selon les deux directions principales de sollicitation :

$$\bar{\nu} = -\frac{\bar{\epsilon}_x}{\bar{\epsilon}_y} \quad (5.2)$$

avec  $\bar{\nu}$  le coefficient de Poisson médian,  $\bar{\epsilon}_x$  la déformation médiane selon la direction  $x$  et  $\bar{\epsilon}_y$  la déformation médiane selon la direction  $y$ .

La **figure 5.17** présente les déformations médianes selon  $x$  et  $y$  en fonction du temps, tandis que la **figure 5.18** présente le coefficient de Poisson médian ainsi obtenu et l'effort mesuré en fonction du temps.

Les coefficients de Poisson médians obtenus pour chaque vitesse d'étirage sont représentés **figure 5.19**.

Les valeurs obtenues présentent une grande dispersion en début d'essais, du fait de l'imprécision des mesures aux premiers instants et que le coefficient de Poisson médian est alors le rapport de quantités très faibles (proche de zéro) présentant une grande variation. Plus en avant dans l'essai, la valeur se stabilise et les données sont autour de 0.5.

Dix répétitions ont été réalisées pour une vitesse de traverse de 50mm.min<sup>-1</sup>. La **figure 5.20** représente les coefficients de Poisson médians alors obtenus.

Cette méthode expérimentale en est toujours à l'étape de développement. Le choix du marquage reste à étudié : marquage structuré ou bien mouchetis aléatoire ? L'analyse des données nécessite une étape de nettoyage et de tri. L'analyse des



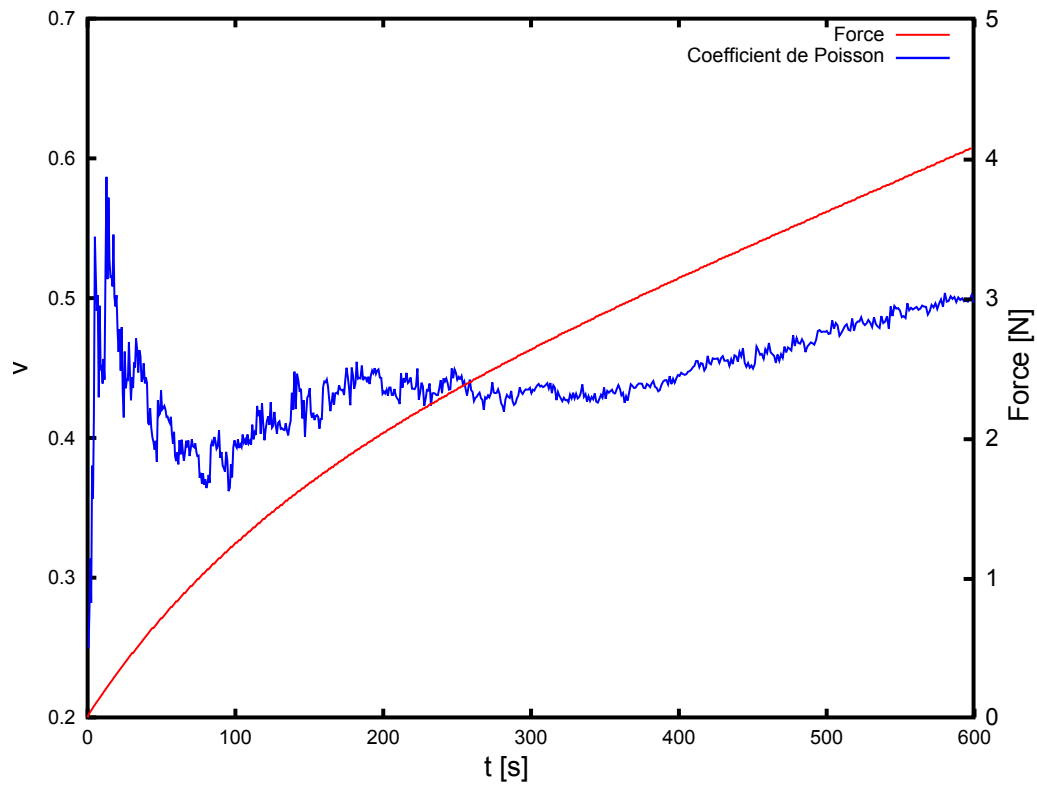


FIGURE 5.18 – Coefficient de Poisson médian et effort en fonction du temps -  $5\text{mm.min}^{-1}$  - caoutchouc naturel

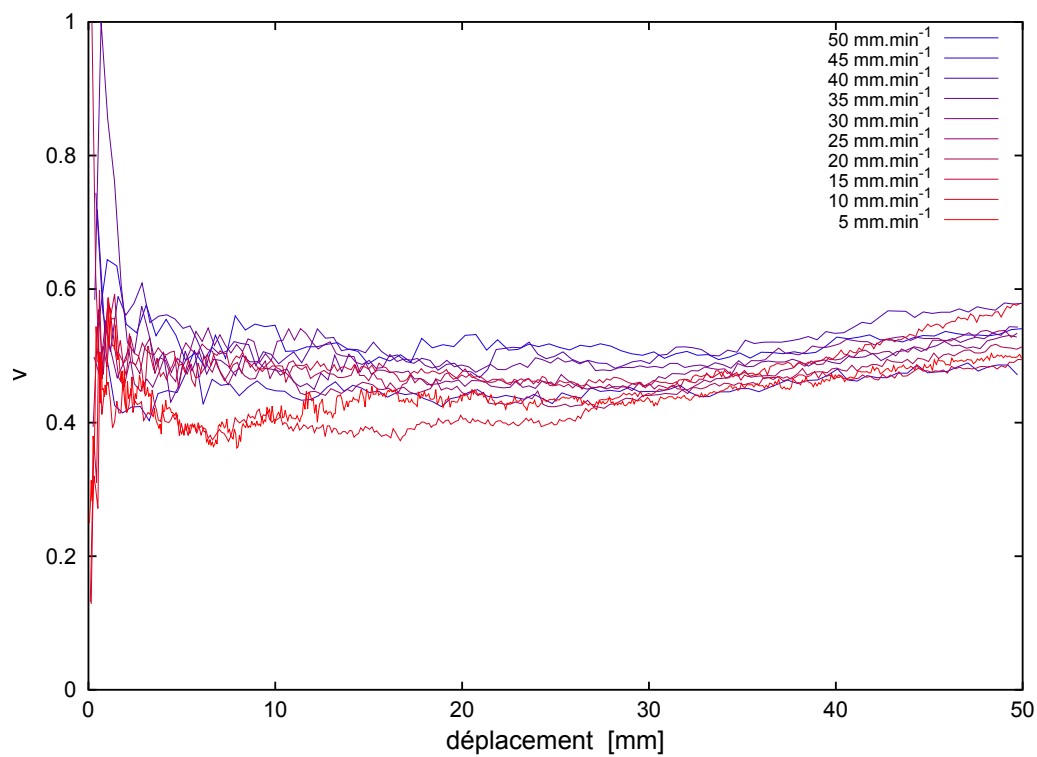


FIGURE 5.19 – coefficient de Poisson médian en fonction du temps - différentes vitesse d'étirage - caoutchouc naturel

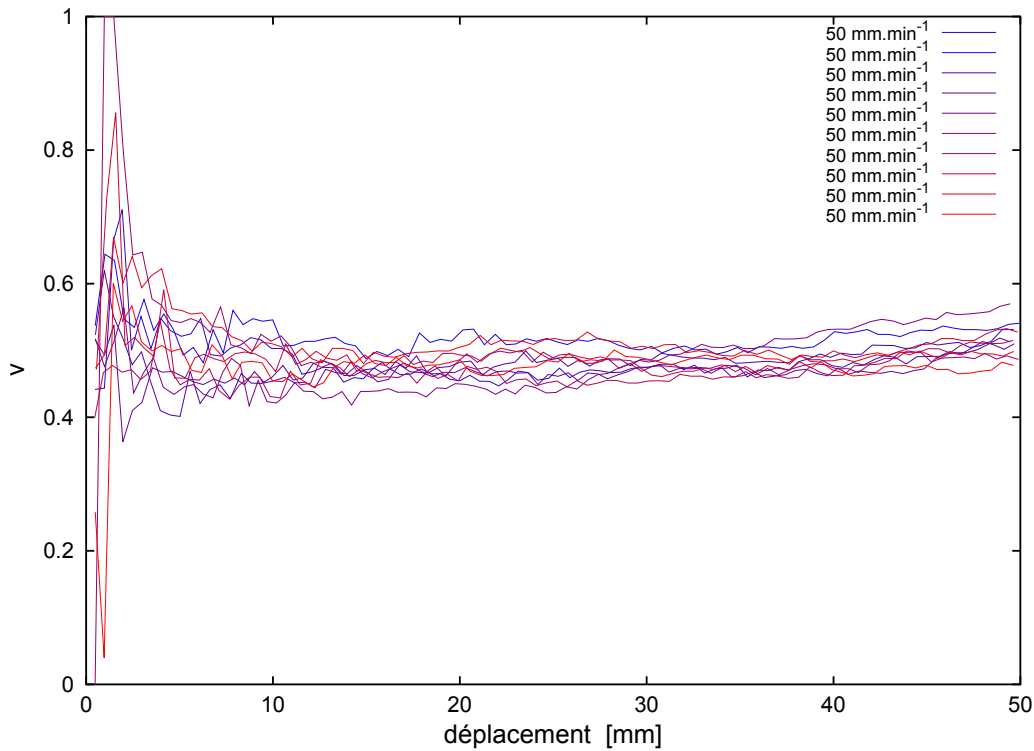


FIGURE 5.20 – coefficient de Poisson médian en fonction du temps - 10 répétitions à  $50\text{mm.min}^{-1}$  - caoutchouc naturel

déplacements n'est pas toujours un succès et les données de certaines boîtes sont alors inexploitable et doivent être écartées du lot de données. L'utilisation de l'enceinte, couplée aux mesures de déplacements par corrélation d'images, doit être étudiée car l'enceinte amène deux vitres en obstacle entre l'échantillon et la caméra, complexifiant le trajet optique des éléments observés.

À terme, les mesures de déformations locales par corrélation d'image à différentes températures en traction uni-axiale permettront d'identifier le comportement mécanique des matériaux polymères à l'état solide sur le site de plasturgie de l'INSA Lyon.



# Chapitre 6

## Conclusion générale et perspectives

Le procédé d'injection soufflage cycle chaud, rendu accessible aux presses à injecter standard grâce à la technologie innovante du projet *IS<sup>2</sup>*, est un procédé dans lequel la préforme est soufflée juste après avoir été injectée. Il n'y a donc pas de stockage et de phase de chauffe. La répartition initiale des températures avant soufflage ne peut être contrôlée et est une conséquence directe des conditions d'injection. La modélisation numérique de ce procédé est d'intérêt afin de mieux comprendre les phénomènes physiques qui s'y produisent. Puis, fort de cette compréhension, il est alors nécessaire de renforcer le modèle afin de tendre vers le plus de prédictibilité possible. Le modèle doit donc avoir des réactions physiques en réponse aux variations des données d'entrée, mais il faut aussi pouvoir comparer les résultats numériques à de vraies données expérimentales pour juger de cette prédictibilité. Une fois le modèle validé, il devient intéressant d'optimiser numériquement le procédé afin d'économiser du temps de mise au point, qui se traduit par du temps sur presse, par de l'occupation de technicien, par de la matière utilisée et surtout du temps perdu. L'optimisation du procédé d'injection soufflage cycle chaud n'a que peu de leviers sur lesquels agir. La température de la matière avant soufflage n'est pas directement modifiable car la phase d'injection préalable impose le champ de température avant soufflage. L'optimisation d'un tel procédé ne peut être réalisé qu'essentiellement sur la géométrie initiale de la préforme, et plus précisément sur la répartition des épaisseurs initiales.

Trois matériaux ont été caractérisés afin de renseigner les lois de comportements correspondantes dans le modèle numérique. Les matériaux en question sont des polypropylènes copolymères statistiques présentant des grades différents. Afin de déterminer les lois de comportements adéquates il a fallu répondre à plusieurs questions :

- Quelle est la plage de température de transformation du procédé pour ces matériaux ?
- Avant le soufflage, et donc après l'injection, dans quel état est la matière ?
- L'état de la matière est-il modifié pendant le soufflage ?

Ces questions ont dessinées les lignes des études de caractérisation : des mesures de DSC ont permis d'identifier le phénomène de cristallisation des différents polymères, sous conditions isothermes et anisothermes, et ont permis d'écarter la possibilité d'une éventuelle cristallisation se déroulant avant la fin du soufflage.

Fort de ces constats, une caractérisation du comportement thermo-mécanique

des polymères a été menée à l'aide de mesures de rhéométrie dynamique à plateaux oscillants. Le traitement de ces données a amené à l'identification des paramètres de la dépendance thermique de la viscosité, de même que l'identification des paramètres de trois modèles rhéologiques différents : un modèle newtonien généralisé et deux modèles viscoélastiques.

Une troisième étude, mêlant DSC et rhéométrie, a eu pour but d'explorer l'effet de la sollicitation de cisaillement sur la cristallisation, par l'analyse de l'évolution des modules mesurés à différentes fréquences de sollicitation et différentes cinétiques de refroidissement. À nouveau, la possibilité que la cristallisation se produise durant le procédé a été écartée.

Le modèle rhéofluidifiant de Cross, avec la dépendance thermique prise en compte par le biais d'une loi d'Arrhénius, a été choisi afin de rendre compte du comportement des polymères dans le modèle numérique.

L'approche fondue a justifié l'utilisation du logiciel POLYFLOW. Trois étapes ont été identifiées dans le procédé et le modèle a été élaboré en conséquence. Une étude de sensibilité a été menée. Il apparaît que, bien que le problème soit déjà contraint de par la géométrie, la loi de comportement choisie a tout loisir de s'exprimer. L'utilisation d'un modèle de Cross conduit à des épaisseurs finales différentes du cas où le matériau est considéré comme un fluide purement newtonien.

Le modèle réagit également lorsque les paramètres du modèles de Cross sont modifiés, comme en attestent les résultats sur la géométrie pot de yaourt pour les trois matériaux de l'étude.

La dépendance en température, via la loi d'Arrhénius, impacte également les épaisseurs finales car une variation de l'énergie d'activation, l'un des paramètres de la loi d'Arrhénius, conduit à des résultats d'épaisseurs finales différentes. La loi d'Arrhénius donne plus ou moins d'importance aux gradients de températures avant soufflage.

Enfin, à condition que la loi de comportement soit dépendante de la vitesse de sollicitation, la pression imposée est également l'un des paramètres sensibles du modèle. Il est essentiel de représenter l'évolution de la pression par une loi thermodynamique reliant la pression à l'évolution du volume interne encapsulé.

À travers la variation de la pression imposée, les composantes du tenseur des taux de déformation ont été analysées au cours du soufflage. Il est apparu que le cisaillement intervient durant le procédé, et que le choix de caractériser les matériaux en cisaillement est fondé. Il apparaît aussi que les déformations élongationnelles sont à prendre en considération également. À défaut d'une caractérisation en sollicitation élongationnelle dans le domaine fondu, il est plus sage de considérer la réponse du matériau isotrope plutôt que de renseigner une loi avec des paramètres sortis du néant.

Le point majeur de ce procédé à retenir est que ce qui définit la résistance locale de la préforme au soufflage est le couple épaisseur/viscosité. Et à travers la viscosité, ce sont le caractère rhéofluidifiant et la dépendance à la température qui s'expriment.

Afin de valider le modèle numérique, des pièces ont été prélevées lors de phases de mise au point du moule  $IS^2$ , pour la géométrie flacon et la géométrie pot de yaourt bi-étage. Une méthode de mesure facile d'accès a été utilisée : les pièces sont découpées puis les plans de coupes sont numérisés à l'aide d'un scanner et

les images obtenus sont numériquement analysées afin d'en déduire les épaisseurs. Cette première méthode souffre de la dispersion induite par la méthode de découpe. Les pièces ont alors été analysées par tomographie. Les répartitions d'épaisseurs obtenues à partir des données de tomographie présentent bien moins d'erreur et les dispersions observées peuvent légitimement être attribuées au procédé. La comparaison avec les épaisseurs simulées est satisfaisante, le modèle étant à même de présenter les mêmes variations d'épaisseurs que celles observées.

Enfin, une optimisation des épaisseurs de la préforme de la géométrie Flacon est proposée. Deux algorithmes ont été utilisés : l'algorithme du Simplexe et l'algorithme Prédicteur/Correcteur. Le premier est plus long à converger mais a le mérite de pouvoir être appliqué à de nombreux problèmes d'optimisation. Le second, tirant parti de la connaissance préalable des directions de correction des épaisseurs, s'avère plus rapide à converger mais est limité à des problèmes dont les directions d'action sont intuitives. Une géométrie optimale de préforme est proposée avec pour objectif l'obtention d'une répartition d'épaisseurs uniforme en fin de soufflage. La géométrie optimale présente une forte singularité dans une zone étant fortement étirée. La question se pose de la faisabilité de la solution. L'optimisation doit prendre en considération cet aspect de faisabilité : les outillages sont-ils usinables avec la même précision que la géométrie optimale est définie ? Un tel gradient d'épaisseur ne va-t-il conduire le modèle à sortir de ses limites, rendant ainsi la solution optimale hors propos ? Afin d'éviter de proposer des solutions irréalisables, il est nécessaire d'identifier les limites du procédé en échangeant avec les professionnels du métier et d'arrêter un cahier des charges solides. Si trop de liberté est donné à l'optimisation, les calculs seront rallongés pour conduire au final à une solution non-exploitable. Une optimisation plus complète serait cependant plus pertinente afin de déterminer dans un premier temps la pièce finale optimale à l'aide d'une première boucle utilisant l'algorithme du Simplexe. Cette pièce optimale devra répondre aux contraintes d'un cahier des charges bien établi : poids maximum toléré, résistance mécanique de la pièce. Une deuxième boucle utilisant l'algorithme Prédicteur/Correcteur déterminera ensuite la répartition d'épaisseurs initiale de la préforme permettant d'obtenir cette pièce optimale après soufflage, en considérant les limites imposées par les méthodes d'usinage du moule et la faisabilité du soufflage concret de la préforme.

Ces travaux de thèse ont permis le développement, en parallèle des études concernant le procédé d'injection-soufflage cycle chaud, d'un module de mesures des déplacements par extensométrie et d'une enceinte thermo-régulée sur la machine de traction déjà existante sur le site de Plasturgie de l'INSA Lyon à Oyonnax. Le développement de cet outil expérimental a pour ambition de doter le laboratoire d'un moyen de caractérisation des matériaux polymères en sollicitation uniaxiale à différentes températures allant de la température ambiante à plusieurs centaines de degrés celsius, en partant de l'état solide. Cet outil pourra, par exemple, être déployé pour identifier le comportement des matériaux mis en forme par le procédé plus conventionnel de l'injection-étirage-soufflage tels que le PET.

Pour conclure, le modèle numérique établi est satisfaisant. Le choix de la loi de comportement s'avère en accord avec les paramètres de mise en forme du procédé. L'optimisation numérique de la préforme est fonctionnelle et la porte reste ouverte à l'ajout de contraintes dans le schéma d'optimisation selon les besoins à venir.

Plusieurs axes de travail demeurent afin de pousser toujours plus loin le modèle numérique.

Pour commencer, un modèle rhéologique plus complet, couplant le comportement à l'état fondu et l'impact de la cristallisation sur les propriétés mécaniques en fonction des cinétiques de refroidissement, devrait être développé afin de supprimer l'hypothèse, bien que justifiée, de la non-cristallisation du polymère pendant la mise en forme. Donner la liberté de cristalliser dans le modèle numérique permettrait de s'assurer qu'en effet, d'un point de vue numérique, en accord avec le modèle établi et les paramètres de mise en forme renseignés, la cristallisation n'a pas lieu ou bien qu'au contraire, elle opère partiellement et joue alors le rôle de charge dans la phase amorphe de la matière encore à l'état fondu et augmente alors la résistance au soufflage de la matière. Toujours d'un point de vue modèle, une loi de comportement en cisaillement, couplée à un modèle rhéologique dépendant des sollicitations élongationnelles doit être développée et les moyens d'identifier les paramètres de cette loi doivent également être à l'étude. Comme il a été rappelé au regard de l'analyse des composantes du tenseur des taux de déformation, une caractérisation en cisaillement est nécessaire mais n'offre qu'une réponse partielle quant à la réponse du polymère fondu aux sollicitation multiples mises en jeux par le soufflage.

Ensuite, concernant le modèle numérique, la simplification de l'histoire mécanique et thermique avant soufflage représente une hypothèse forte. Des contraintes résiduelles peuvent demeurer après la phase d'injection, et la répartition de température peut être différente de celle obtenue par la présente simulation. La température est pourtant cruciale pour définir la résistance locale de la préforme, car cette résistance dépend de la viscosité locale. Dans le cas où un modèle de cristallisation est considéré, la détermination de la température se doit d'être aussi précise que possible. Comme proposé dans la présentation du modèle, la première phase de conduction pure devrait être suppléée par une simulation du remplissage de la préforme, et les champs de températures devraient ensuite être renseignés dans le modèle numérique POLYFLOW correspondant aux échanges thermiques lors de l'ouverture du moule. Un autre aspect qui nécessite d'être affiné dans le modèle concerne la pression imposée, qui bien qu'évolutive, ne se base sur aucune mesure expérimentale. L'évolution imposée n'est donc pas forcément celle rencontrée dans le procédé. Une loi thermodynamique plus aboutie couplée à des mesures in-situ afin de la nourrir est ce vers quoi il faut tendre pour prétendre à un modèle prédictif. Le troisième point qu'il serait pertinent d'étudier afin de gagner plus en confiance avec le modèle numérique concerne le temps de soufflage. La discrétisation temporel est fortement dépendante du maillage utilisé, du dimensionnement des conditions de contact -notamment le glissement à la paroi- et du schéma temporel choisi. Un moule instrumenté, permettant de mesurer en différents points à quels temps la préforme entre en contact avec le moule permettrait d'affiner ces éléments.

# Bibliographie

- Adams, A. M., C. P. Buckley et D. P. Jones. 2000, «Biaxial hot drawing of poly(ethylene terephthalate) : measurements and modeling of stress-stiffening», *Polymer*, vol. 41.
- Ahzi, S., A. Makradi, R. V. Gregory et D. D. Edie. 2003, «Modeling of deformation behavior and strain-induced crystallization in poly(ethylene terephthalate) above the glass transition temperature», *Mechanics of Materials*, vol. 35.
- ANSYS. 2010, «Ansys polyflow user's guide», *release 13.0*.
- Bellet, M., B. Monasse et J. F. Agassant. 2002, «Simulation numérique des procédés de soufflage», *Techniques de l'ingénieur (in french)*.
- Bendada, A., F. Erchiqui et A. Kipping. 2005, «Understanding heat transfer mechanisms during the cooling phase of blow molding using infrared thermography», *NDT and E International*, vol. 38.
- Béreaux, Y., J. Y. Charneau et J. Balcaen. 2011, «Optical measurement and modeling of parison sag and swell in blow moulding», *International Journal of Material Forming*, vol. 5.
- Bordival, M., F. M. Schmidt, Y. L. Maoult et V. Velay. 2009, «Optimization of preform temperature distribution for the stretch-blow molding of pet bottles : Infrared heating and blowing modeling», *Polymer Engineering and Science*, vol. 49.
- Buckley, C. P. et D. C. Jones. 1995, «Glass-rubber constitutive model for amorphous polymers near the glass transition», *Polymer*, vol. 36.
- Buckley, C. P. et D. C. Jones. 1996, «Hot-drawing of poly(ethylene terephthalate) under biaxial stress : application of a three-dimensional glass-rubber constitutive model», *Polymer*, vol. 37.
- Buckley, C. P. et C. Y. Lew. 2011, «New progress in the modelling of stretching flows in a stress-crystallising polymer», *The 14th International ESAFORM Conference on Material Forming*.
- Carrot, C. et J. Guillet. 1999, «Viscoélasticité linéaire des polymères fondus», *Techniques de l'ingénieur (in french)*.
- Carrot, C., J. Guillet, J. F. May et J. P. Piaux. 1992, «Application of the marquardt-levenberg procedure to the determination of discrete relaxation spectra», *Macromolecular Theory and Simulation*, vol. 1.



- Champin, C. 2007, *Modélisation 3D du chauffage par rayonnement infrarouge et de l'étirage soufflage de corps creux en PET*, thèse de doctorat, Thèse de l'École des Mines de Paris.
- Chevalier, L. et Y. Marco. 2007, «Identification of a strain induced crystallization model for pet under uni- and bi-axial loadings : Influence of temperature dispersion», *Mechanics of Materials*, vol. 39.
- Cosson, B. 2008, *Modélisation et simulation numérique du procédé de soufflage par bi-orientation des bouteilles en PET : évolution de microstructure - évolution de comportement*, thèse de doctorat, Thèse de l'université Paris-est (in french).
- Dahoun, A. 1992, *Comportement plastique et textures de déformation des polymères semi-cristallins en traction uniaxiale et en cisaillement simple*, thèse de doctorat, Thèse de l'Institut National Polytechnique de Lorraine.
- Devaux, N. 2003, *Influence d'un cisaillement sur les premiers stades de la cristallisation du polypropylène*, thèse de doctorat, Thèse de l'École des Mines de Paris (in french).
- Duffo, P., B. Monasse, J. M. Haudin, C. G'Sell et A. Dahoun. 1995, «Rheology of polypropylene in the solid state», *Journal of Materials Science*, vol. 30.
- Duval, C. 2004, «Polypropylènes (pp)», *Techniques de l'ingénieur (in french)*.
- Fatt, M. S. H. et X. Ouyang. 2008, «Three-dimensional constitutive equations for styrene butadiene rubber at high strain rates», *Mechanics of Materials*, vol. 40.
- Focatiis, D. A. D., J. Embury et C. P. Buckley. 2010, «Large deformations in oriented polymer glasses : Experimental study and a new glass-melt constitutive model», *Journal of Polymer Science*, vol. 48.
- Fukuzawa, Y., S. Tanoue et Y. Iemotoj. 2010, «Three- dimensional simulation on multilayer parison shape at pinch-off stage in extrusion blow molding», *Polymer Engineering and Science vol.50*.
- Ghafur, M. O., B. Koziey et J. Vlachopoulos. 1994, «Simulation of thermoforming and blowmolding – theory and experiments», *Rheological Fundamentals of Polymer Processing (pp.321-383)*.
- Groot, J. A. W. M., C. G. Giannopapa et R. M. M. Mattheij. 2010, «A computer simulation model for the stretch blow moulding process of polymer containers», *ASME 2010*.
- Groot, J. A. W. M., R. M. M. Mattheij et C. G. Giannopapa. 2012, «Modelling preform and mould shapes in blow moulding», *Progress in Industrial Mathematics at ECMI 2010 (pp. 319-326)*.
- Hammami, A. et J. E. Spruiell. 1995, «Quiescent nonisothermal crystallization kinetics of isotactic polypropylenes», *Polymer Engineering and Science*, vol. 35.
- Haudin, J. M., C. Duplay, B. Monasse et J. L. Costa. 2002, «Shear-induced crystallization of polypropylene - growth enhancement and rheology in the crystallization range», *Macromolecular Symposia*, vol. 185.

- Haynes, A. R. et P. D. Coates. 1996, «Semi-automated image analysis of the true tensile drawing behaviour of polymers to large strains», *Journal of Materials Science*, vol. 31.
- Hopmann, C., W. Michaeli et S. Rasche. 2011, «Fe-analysis of stretch-blow moulded bottles using an integrative process simulation», *The 14th International ESA-FORM Conference on Material Forming*.
- Housmans, J. W., G. W. M. Peters et H. E. H. Meijer. 2009, «Flow-induced crystallization of polypropylene/ethylene random copolymers», *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, vol. 98.
- Huang, H. X., Z. S. Yin et J. H. Liu. 2007, «Visualization study and analysis on perform growth in polyethylene terephthalate stretch blow molding», *Journal of Polymer Applied Science*, vol. 103.
- Kamal, M. R., D. M. Kalyon et V. Tan. 1982, «Anisotropy and dimension of blow-molded polyethylene bottles», *Polymer Engineering and Science*, vol. 22.
- Kitamura, K., K. Mototani et F. Kimura. 2007, «Heat transfert of combined forced and natural convection from horizontal cylinder to air», *Heat Transfer-Asian Research*, vol. 36.
- Kontou, E. et P. Farasoglou. 1998, «Determination of the true stress-strain behavior of polypropylene», *Journal of Materials Science*, vol. 33.
- Koscher, E. et R. Fulchiron. 2002, «Influence of shear on polypropylene crystallization : morphology development and kinetics», *Polymer*, vol. 43.
- Kumuraswamy, G., R. K. Verma, A. M. Issaian, P. Wang, J. A. Kornfield, F. Yeh, B. S. Hsiao et R. H. Olley. 2000, «Shear-enhanced crystallization in isotactic polypropylene part 2. analysis of the formation of the oriented “skin”», *Polymer*, vol. 41.
- Lange, J. et Y. Wyser. 2003, «Recent innovations in barrier technologies for plastic packaging - a review», *Packaging Technology and Science*, vol. 16.
- Lee, D. K. et S. K. Soh. 1996, «Prediction of optimal preform thickness distribution in blow molding», *Polymer Engineering and Science*, vol. 36.
- Li, M., G. Li, Z. Zhang, X. Dai et K. Mai. 2014, «Enhanced  $\beta$ -crystallization in polypropylene random copolymer with a supported  $\beta$ -nucleating agent», *Thermochimica Acta*, vol. 598.
- Lorenzo, A. T., M. L. Arnal, J. Albuerne et A. J. Müller. 2007, «Dsc isothermal polymer crystallization kinetics measurements and the use of the avrami equation to fit the data : Guidelines to avoid commons problems», *Polymer Testing*, vol. 26.
- Luersen, M. A. et R. L. Riche. 2004, «Globalized nelder-mead method for engineering optimization», *Computer and Structures*, vol. 82.

- Makradi, A., S. Ahzi, R. V. Gregory et D. D. Edie. 2005, «A two-phase self-consistent model for the deformation and phase transformation behavior of polymers above the glass transition temperature : application to pet», *International Journal of Plasticity*, vol. 21.
- Menary, G. H., C. W. Tan, C. G. Armstrong, Y. Salomeia et E. M. A. Harkin-Jones. 2010, «Validating injection stretch-blow molding simulation through free blow trials», *Polymer Engineering and Science*, vol. 50.
- Monasse, B. 1995, «Nucleation and anisotropic crystalline growth of polyethylene under shear», *Journal of Material Science*, vol. 30.
- Monasse, B. et J. M. Haudin. 1986, «Thermal dependence of nucleation and growth rate in polypropylene by non isothermal calorimetry», *Colloid and Polymer Science*, vol. 264.
- Monasse, B. et J. M. Haudin. 1988, «Effect of random copolymerization on growth transition and morphology change in polypropylene», *Colloid and Polymer Science*, vol. 266.
- Mubarak, Y., E. M. A. Harkin-Jones, P. J. Martin et M. Ahmad. 2001, «Modeling of non-isothermal crystallization kinetics of isotactic polypropylene», *Polymer*, vol. 42.
- Nogales, A., B. S. Hsiao, R. H. Somani, S. Srinivas, A. H. Tsou, F. J. Balta-Calleja et T. A. Ezquerra. 2001, «Shear-induced crystallization of isotactic polypropylene with different molecular weight distributions : in situ small- and wide-angle x-ray scattering studies», *Polymer*, vol. 42.
- Papageorgiou, D. G., G. Z. Papageorgiou, D. N. Bikiaris et K. Chrissafis. 2013, «Crystallization and melting of propylene-ethylene random copolymers. homogeneous nucleation and  $\beta$ -nucleating agents», *European Polymer Journal*, vol. 49.
- Pham, X. T., F. Thibault et L. T. Lim. 2004, «Modeling and simulation of stretch blow molding of polyethylene terephthalate», *Polymer Engineering and Science*, vol. 44.
- Poitou, A., A. Ammar, Y. Marco, L. Chevalier et M. Chaouche. 2003, «Crystallization of polymers under strain : from molecular properties to macroscopic models», *Computers Method in Applied Mechanics and Engineering*, vol. 192.
- Press, W. H., S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling et B. P. Flannery. 1994, *Numerical recipes in Fortran - The Art of Scientific Computing - Second Edition*, Cambridge University Press ISBN 0-51-43064-X.
- Salomeia, Y., G. H. Menary, C. G. Armstrong, J. Nixon et S. Yan. 2015, «Measuring and modelling air mass flow rate in the injection stretch blow moulding process», *International Journal of Material Forming*, vol. 8.
- Sanchez, I. C. et R. K. Eby. 1973, «Crystallization of random copolymers», *Journal of Research of the National Bureau of Standards-A. Physics and Chemistry*, vol. 77A.

- Sarrabi, S., S. A. E. Boyer, M. F. Lacrampe, P. Krawczak et A. Tcharkhtchi. 2013, «Metallocene polypropylene crystallization kinetic during cooling in rotational molding thermal condition», *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 130.
- Schmidt, F. M., J. F. Agassant et M. Bellet. 1998, «Experimental study and numerical simulation of the injection stretch/blow molding process», *Polymer Engineering and Science*, vol. 38.
- Schmidt, F. M., J. F. Agassant, M. Bellet et L. Desoutter. 1996, «Viscoelastic simulation of pet stretch/blow molding process», *Journal of non-Newtonian Fluid Mechanics*, vol. 64.
- Somani, R. H., L. Yang et B. S. Hsiao. 2006, «Effects of high molecular weight species on shear-induced orientation and crystallization of isotactic polypropylene», *Polymer*, vol. 47.
- Supaphol, . et J. E. Spruiell. 2000, «Crystalline memory effects in isothermal crystallization of syndiotactic polypropylene», *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 75.
- Sweeney, J., P. Caton-Rose et P. D. Coates. 2002, «The modeling of large deformations of pre-oriented polyethylene», *Polymer*, vol. 43.
- Sweeney, J., P. Caton-Rose, R. Spares et P. DCoates. 2007, «Unified model of necking and shear banding in amorphous and semicrystalline polymers», *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 106.
- Sweeney, J., T. L. D. Collins, D. Coates et I. M. Ward. 1997, «Application of an elastic model to the large deformation - high temperature stretching of polypropylene», *Polymer*, vol. 38.
- Sweeney, J. et I. M. Ward. 1995a, «The modeling of multiaxial necking in polypropylene using a sliplink-crosslink theory», *Journal of Rheology*, vol. 39.
- Sweeney, J. et I. M. Ward. 1995b, «Rate dependent and network phenomena in the multiaxial drawing of poly(vinyl chloride)», *Polymer*, vol. 36.
- Sweeney, J. et I. M. Ward. 1996, «A constitutive law for large deformation of polymers at high temperatures», *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, vol. 44.
- Thevenon, A. et R. Fulchiron. 2013, «Elongational behavior of amorphous polymers in the vicinity and above the glass transition temperature», *Polymer Testing*, vol. 32.
- Thevenon, A. et R. Fulchiron. 2014a, «Evolution of poly(propylene) morphology in the rubbery state under uniaxial strain», *Macromolecular Materials and Engineering*, vol. 299.
- Thevenon, A. et R. Fulchiron. 2014b, «A thermomechanical modeling approach for the structural changes in semi-crystalline polymers under elongational strain», *Journal of Materials Science*, vol. 49.

- Thibault, F., A. Malo, B. Lanctot et R. Diraddo. 2007, «Preform shape and operating condition optimization for the stretch blow molding process», *Polymer Engineering and Science*, vol. 47.
- Tribout, C., B. Monasse et J. M. Haudin. 1996, «Experimental study of shear-induced crystallization of an impact polypropylene copolymer», *Colloid and Polymer Science*, vol. 274.
- Vigny, M., A. Aubert, J. M. Hiver, M. Aboufaraj et C. G'Sell. 1999, «Constitutive viscoplastic behavior of amorphous pet during plane-strain tensile stretching», *Polymer Engineering and Science*, vol. 39.
- Vleeshouwers, S. et H. E. H. Meijer. 1996, «A rheological study of shear induced crystallization», *Rheologica Acta*, vol. 35.
- Wang, S., A. Makinouchi et T. Nakagawa. 1998, «Three-dimensional viscoplastic fem simulation of a stretch blow molding process», *Advances in Polymer Technology*, vol. 17.
- Wang, S., A. Makinouchi, M. Okamoto, T. Kotaka, M. Maeshima, N. Ibe et T. Nakagawa. 2000, «Viscoplastic material modeling for the stretch blow molding simulation», *International Polymer Processing*, vol. XV.
- Xiao, Z., L. Li, D. Zhou, G. Xue, Z. Yuan et Q. Dai. 2003, «Isothermal crystallization of low ethylene content polypropylene random copolymer recovered from decalin and n-hexadecane», *Thermochimica Acta*, vol. 404.
- Yang, L. M., V. P. W. Shim et C. T. Lim. 2000, «A visco-hyperelastic approach to modeling the constitutive behavior of rubber», *International Journal of Impact Engineering*, vol. 24.
- Yang, Z. J., E. Harkin-Jones, G. H. Menary et C. G. Armstrong. 2004a, «Coupled temperature-displacement modeling of injection stretch-blow moulding of pet bottles using buckley model», *Journal of Materials Processing Technology*.
- Yang, Z. J., E. Harkin-Jones, G. H. Menary et C. G. Armstrong. 2004b, «A non-isothermal finite element model for injection stretch-blow molding of pet bottles with parametric studies», *Polymer Engineering and Science*, vol. 44.
- Yu, J. C., X. X. Chen, T. R. Yu et F. Thibault. 2004, «Optimization of extrusion blow molding processes using soft computing and taguchi's method», *Journal of Intelligent Manufacturing*, vol. 15.
- Yu, J. C. et J. Y. Juang. 2010, «Design optimization of extrusion-blow-molded parts using prediction-reliability-guided search of evolving network modeling», *Journal of Applied Polymer Science*, vol. 117.
- Zimmer, J., D. Klein et M. Stommel. 2015, «Experimental and numerical analysis of liquid-forming», *Key Engineering Materials*, vol. 651-653.

# Annexes



# Annexe A

## Mesures expérimentales des épaisseurs

### A.1 Principe de la méthode

Le traitement d'image a beaucoup évolué au cours de ces trois ans de travaux.

Les différentes méthodes utilisées reposent sur le même principe : il faut identifier l'objet dans l'image à analyser. Pour ce faire, il est nécessaire de convertir l'image d'étude en image binaire, afin de distinguer les objets du fond. Une image numérisée est au format  $L \times C$  pixels, avec  $L$  le nombre de pixels dans la hauteur de l'image et  $C$  le nombre de pixels dans la largeur de l'image. Chaque pixel, dans le cas d'image couleur, porte trois valeurs : l'intensité de rouge (R), l'intensité de vert (G) et l'intensité de bleu (B).

Lors des premières méthodes de mesure développée sous Matlab avec l'aide de Jean BALCAEN, les images sont dans un premiers temps lues par Matlab. Elles ont alors la forme d'un tableau  $L \times C \times 3$ . Ce tableau à trois dimensions est donc la superposition des tableaux  $L \times C$  associées à chaque valeur RGB d'un pixel. Pour convertir l'image couleur en image binaire, il est possible de ne traiter qu'une seule de ces couleurs, et les deux autres sont alors ignorées, ou bien traiter l'information des trois en prenant les valeurs moyennes des pixels, ou bien médianes, selon le rendu de l'image.

La conversion en image binaire consiste en un seuillage de l'image. Toutes les valeurs de notre tableau supérieures à une valeur fixée au préalable se voient affecter la valeur 1, les autres valeurs sont quant à elles fixées à 0.

Le principe est ensuite d'identifier l'objet à analyser. Si l'image de base n'est pas de bonne qualité (présence de reflets, d'artefacts, ...), alors le traitement d'image ne sera pas exempt d'erreurs.

Un nettoyage préalable de l'image peut être réalisée, en utilisant le logiciel paint par exemple. Mais tout traitement manuel est susceptible de corrompre l'information d'origine. Un nettoyage automatique peut être appliqué afin que chaque image ait le même traitement. Cependant, les risques de créer de l'information sont toujours présents. Mais ces traitements sont utiles pour obtenir un premier aperçu des résultats voulus.



Il est à retenir qu'une bonne image vaut mieux que tout un arsenal de méthodes de nettoyage d'image.

Une fois l'image convertie en donnée binaire, la première méthode consiste à identifier tous les pixels de l'objet et de stocker leurs coordonnées cylindriques dans un tableau en prenant pour origine le barycentre de l'objet. Les coordonnées sont ensuite rangées par angle croissant. Les rayons moyens sont ensuite déduits. Les couples (angle, rayon moyen) sont supposés correspondre alors aux points de la ligne moyenne de l'objet, ou dans un voisinage plus ou moins proche de ces points. Une méthode de croissance de cercles est appliquée à ces points. Dès que le cercle détecte une transition objet/fond d'image de manière symétrique, alors le rayon du cercle est devenu supérieur à la moitié de l'épaisseur locale. L'épaisseur locale en est alors déduite. Des méthodes de correction du placement du centre du cercle sont à envisager si jamais celui-ci est trop éloigné de la ligne moyenne de l'objet.

Cette méthode est une méthode intuitive mais très gourmande en temps de calcul. Pour traiter ce genre de problème, des fonctions déjà intégrées à Matlab existent. Pour les résultats présentés dans ce mémoire, le logiciel ImageJ a été utilisé. Il reprend le même principe tout en étant plus rapide car les fonctions sont déjà compilées.

Les images numérisées des moitiés de bouteilles et de pots de yaourt, de même que les images obtenus à partir des mesures par tomographie ont donc été traitées de la même manière.

Une étude de sensibilité sur des images étalons a été menée.

## A.2 Précision de la méthode

Afin de tester la précision de la méthode, quatre motifs ont été réalisés sous paint : un cercle, un carré, une étoile à six branches et un éclair (voir **figure A.1**). L'épaisseur du trait est fixée à 8 pixels. Chacun des motifs a été grossi d'un facteur deux, puis d'un facteur quatre. Ainsi, les épaisseurs à trouver doivent être de 8 pixels, 16 pixels, et 32 pixels.

Le traitement ImageJ est le suivant :

1. lecture de l'image ;
2. conversion en image binaire ;
3. création d'une deuxième image : chaque pixel porte la valeur de l'épaisseur locale (fonction local thickness) ;
4. création d'une troisième image correspondant au squelette de l'image binaire ;
5. multiplication de l'image squelette avec l'image épaisseur afin que chaque pixel du squelette contienne la valeur de l'épaisseur locale ;
6. sauvegarde de cette image/tableau en tant qu'image texte, afin que les valeurs numériques restent inchangées ;

La **figure A.2** montre les résultats de la détection du squelette pour les différentes formes. La forme d'éclair pose le plus de problème car elle présente des variations d'angles plus importantes.

Les **figures A.3, A.4 et A.5** présentent les mesures d'épaisseurs pour les différentes formes géométriques. Les épaisseurs théoriques étant de 8 pixels, 16 pixels et 32 pixels respectivement.

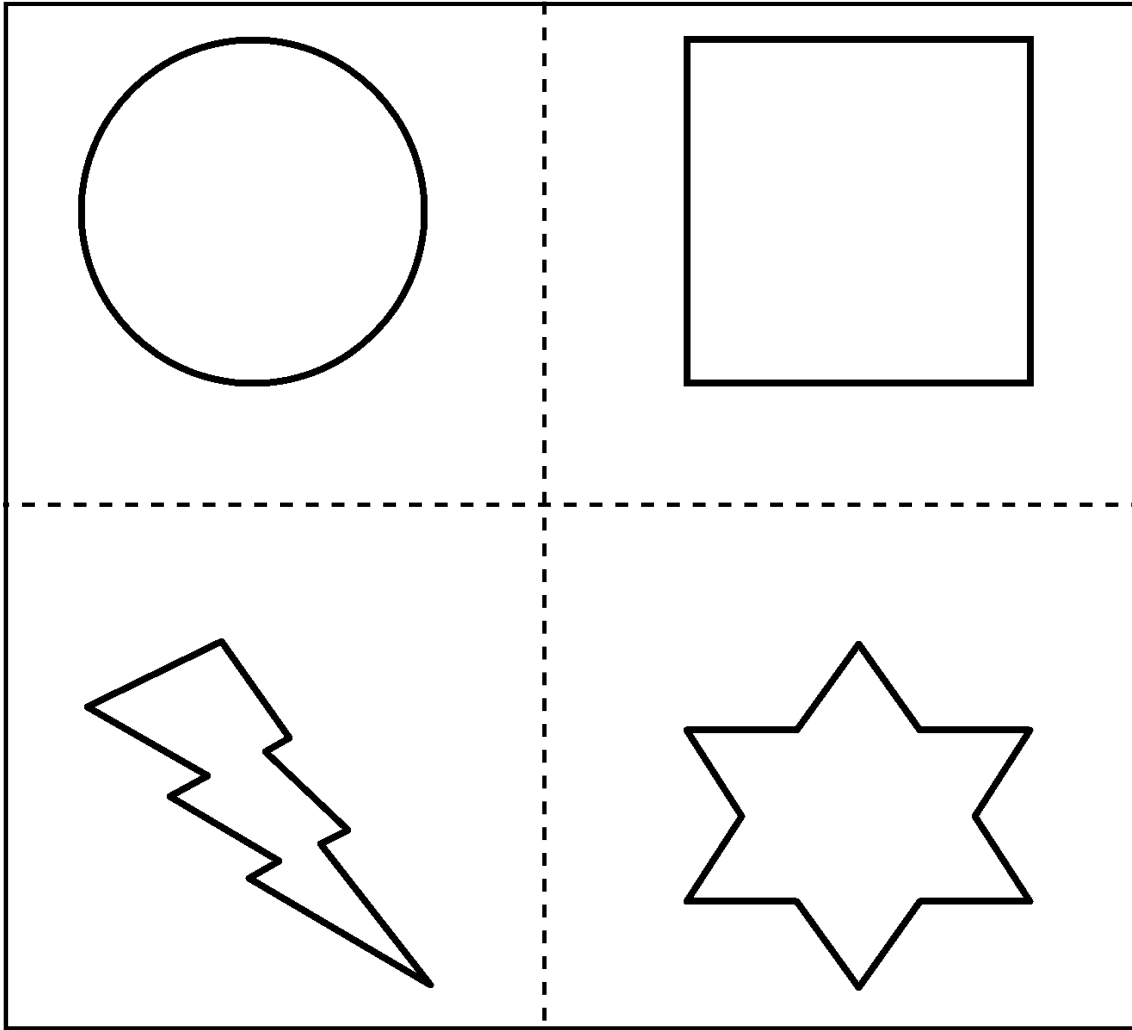


FIGURE A.1 – Formes utilisées pour tester la sensibilité de la mesure d'épaisseur

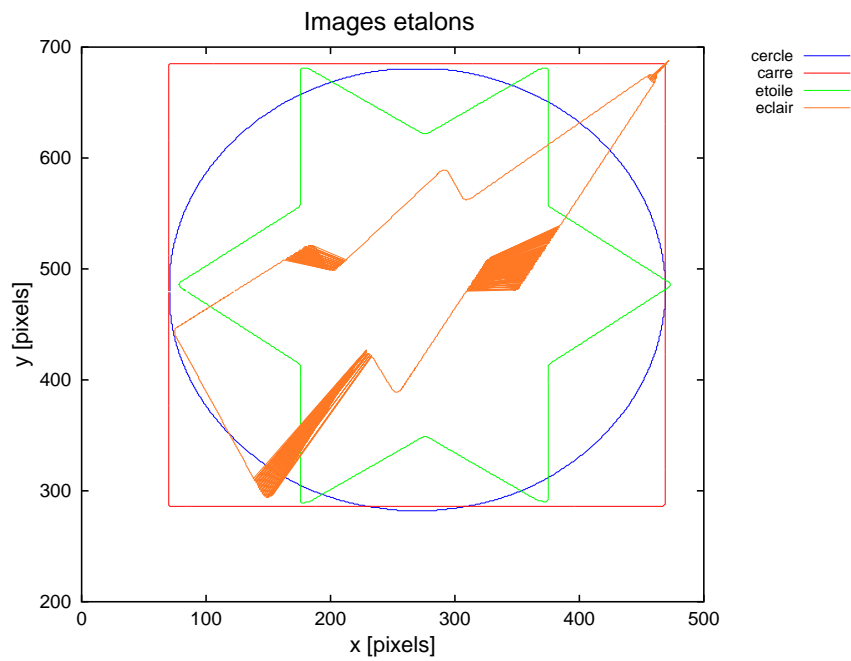


FIGURE A.2 – Détection des contours des formes

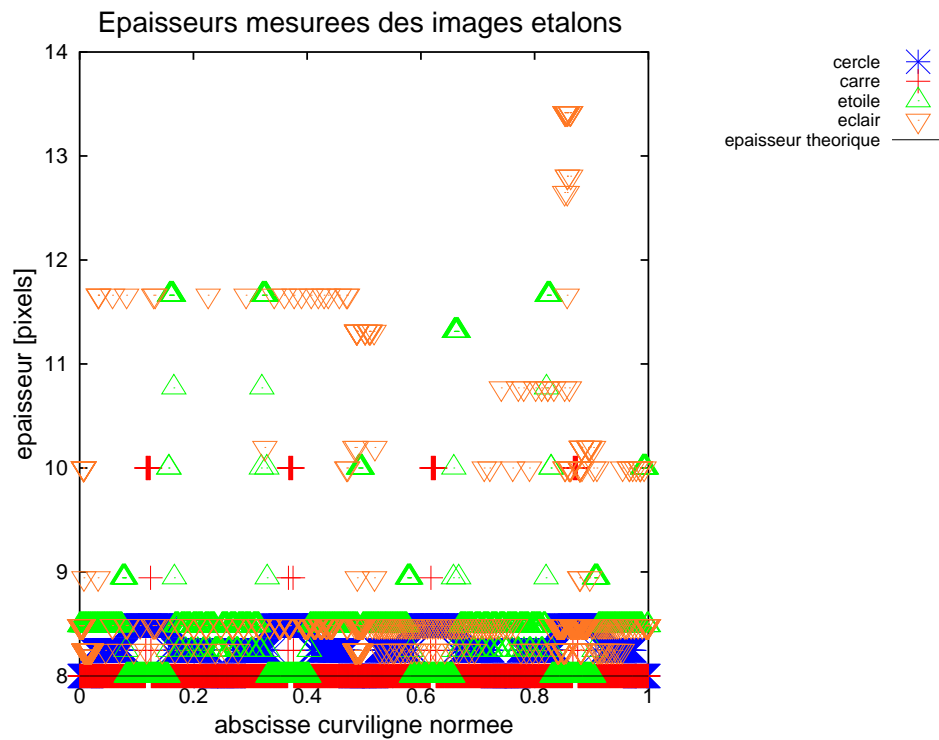


FIGURE A.3 – Mesures d'épaisseurs des images étalons - Épaisseurs théorique 8 pixels

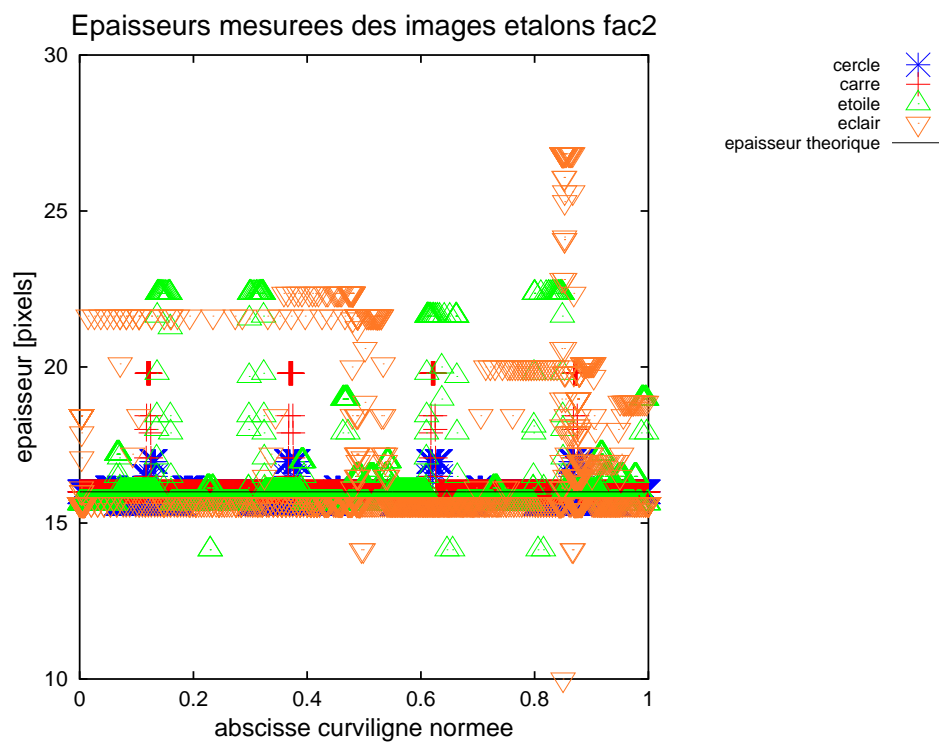


FIGURE A.4 – Mesures d'épaisseurs des images étalons - Épaisseurs théorique 16 pixels

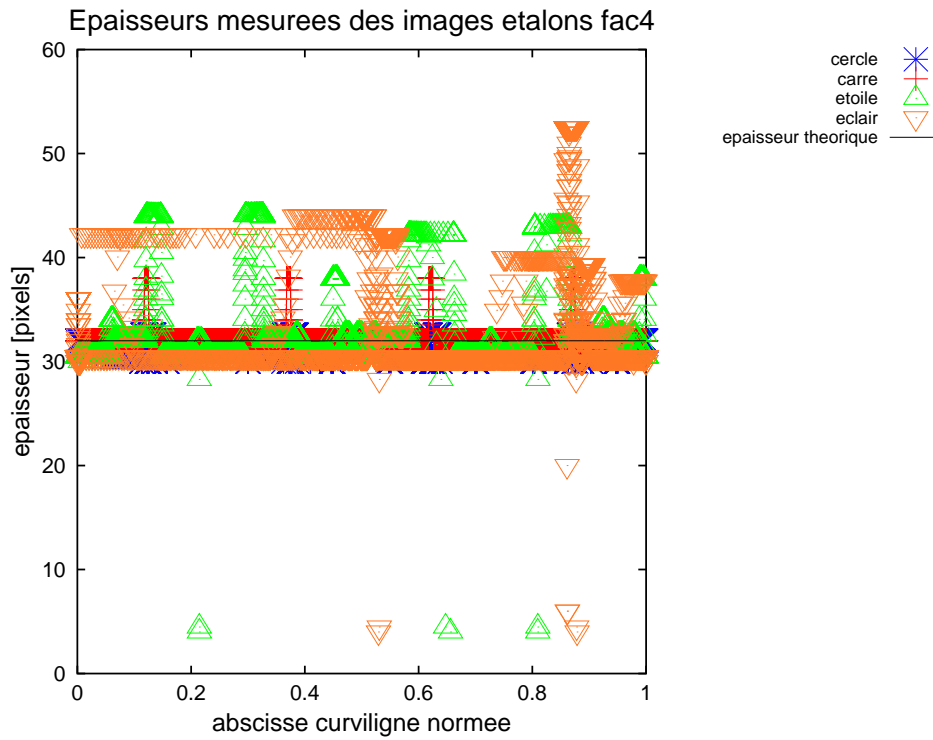


FIGURE A.5 – Mesures d'épaisseurs des images étalons - Épaisseurs théorique 32 pixels

Les écarts moyens, minimum et maximum par rapport à l'épaisseur théorique sont présentés dans le **tableau A.1**. L'écart moyen observé est inférieur à 1 pixel globalement, excepté pour la géométrie étoile 32 pixels et éclair 16 et 32 pixels. Il est donc permis de considérer les mesures précises à  $\pm 1$  pixel.

TABLE A.1 – Étude de sensibilité des mesures d'épaisseurs : écart moyens, minimum et maximum :

Épaisseur <sub>théoriques</sub> [pixels]	$\Delta_{\min}$ [pixels]			$\Delta_{\max}$ [pixels]			$\Delta_{\text{moyen}}$ [pixels]			
	8	16	32	8	16	32	8	16	32	
Cercle	$\epsilon_{\text{relative}}$	-0.485	-0.971	-0.558	0.00	0.38	2.00	-0.26	0.13	0.76
	$\epsilon_{\text{absolue}}$	0.00	0.00	0.00	0.49	0.97	2.00	0.26	0.23	0.82
Carré	$\epsilon_{\text{relative}}$	-2.00	-3.78	-6.00	0.00	0.00	0.00	-0.06	-0.11	-0.19
	$\epsilon_{\text{absolue}}$	0.00	0.00	0.00	2.00	3.78	6.00	0.06	0.11	0.19
Étoile	$\epsilon_{\text{relative}}$	-3.66	-6.36	-12.1	0.00	1.86	28.0	-0.45	-0.26	-0.06
	$\epsilon_{\text{absolue}}$	0.00	0.00	0.00	3.66	6.36	28.0	0.45	0.63	1.55
Éclair	$\epsilon_{\text{relative}}$	-5.42	-10.8	-20.5	-0.25	6.00	28.0	-0.76	-0.56	-0.21
	$\epsilon_{\text{absolue}}$	0.25	0.00	0.00	5.42	10.83	28.0	0.76	1.13	2.61

# Annexe B

## Annexes : Étude thermique

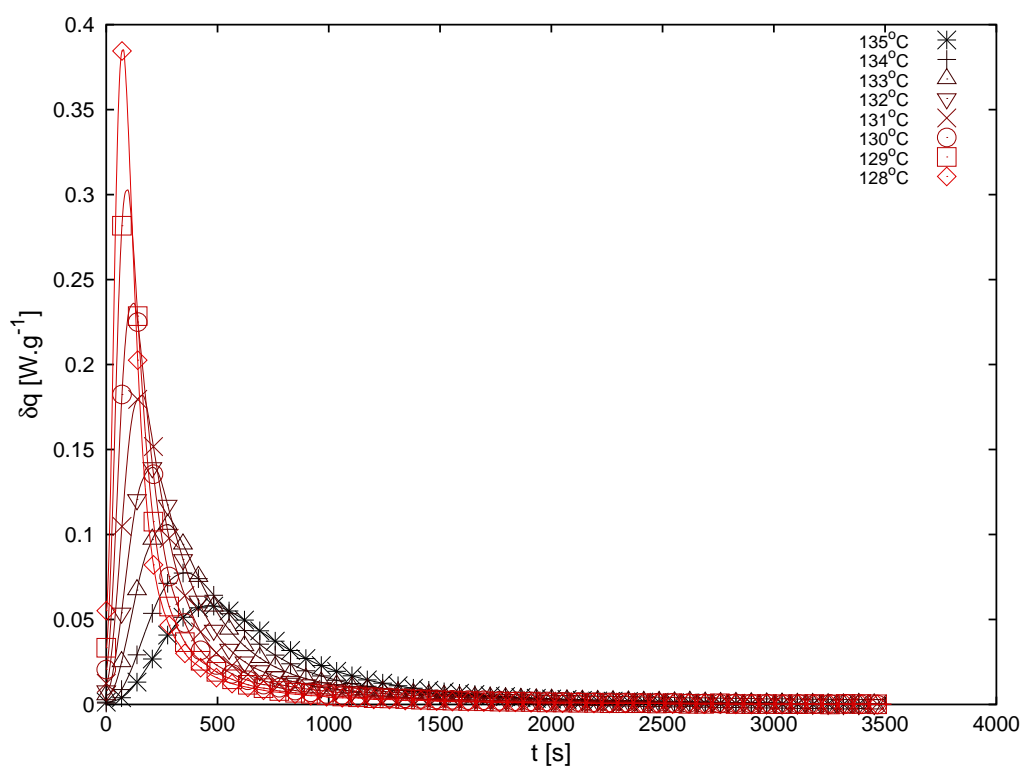


FIGURE B.1 – Résultats DSC pour différentes températures de cristallisation - PPR10232

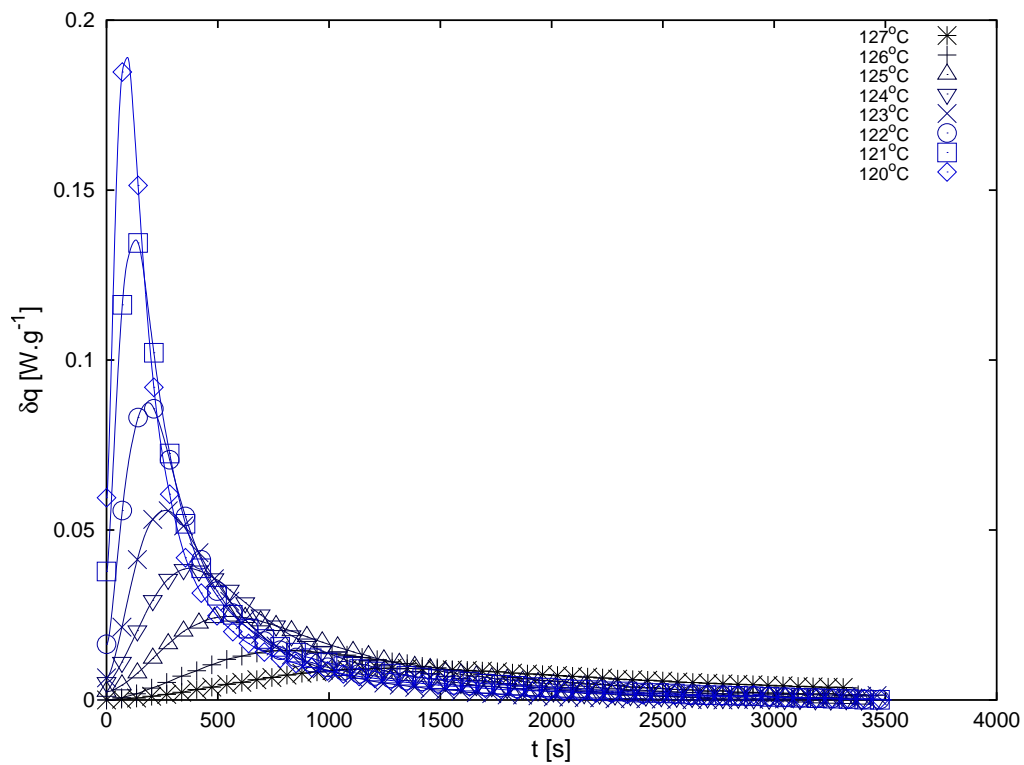


FIGURE B.2 – Résultats DSC pour différentes températures de cristallisation - MR10MX0

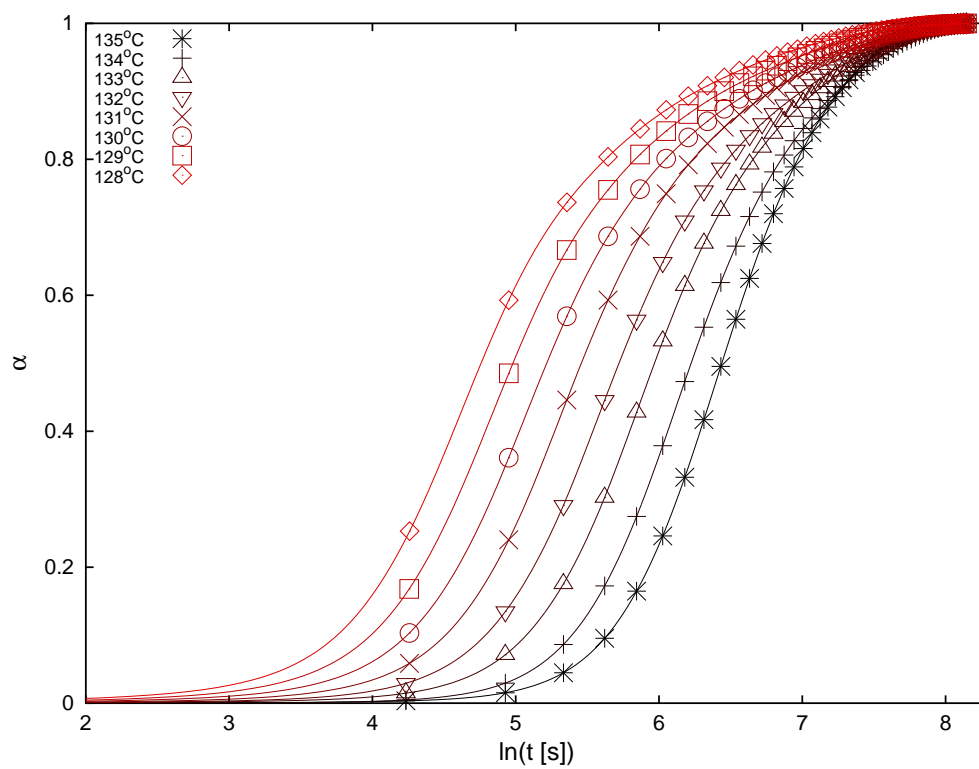


FIGURE B.3 – Évolution de la fraction cristallisée au cours du temps - PPR10232

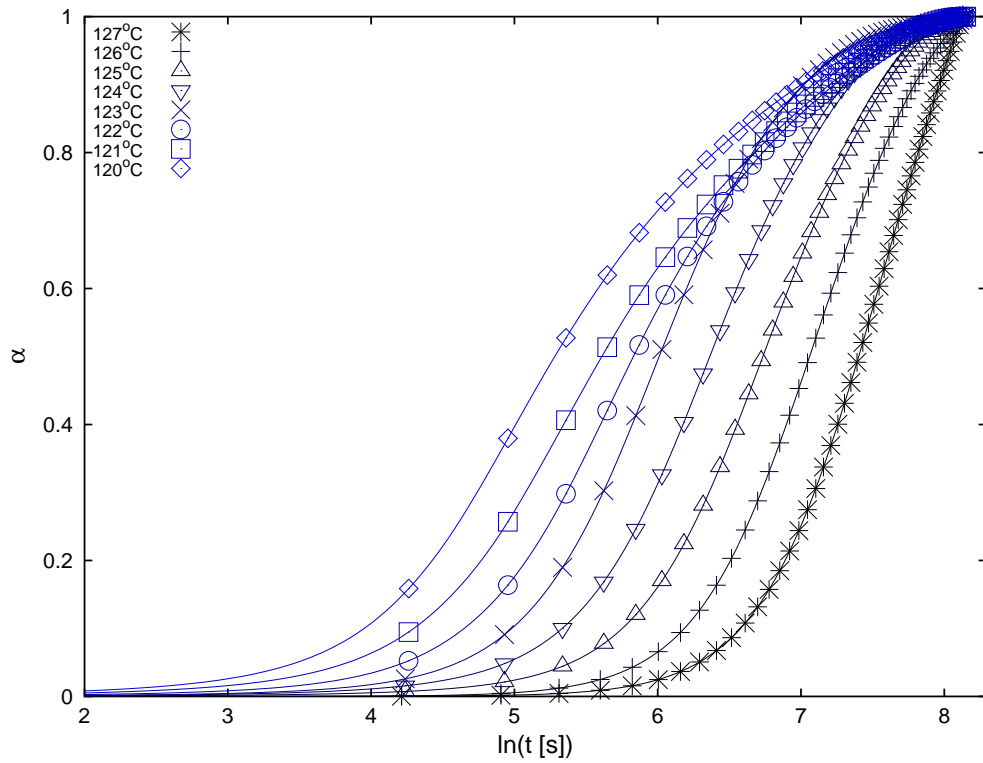
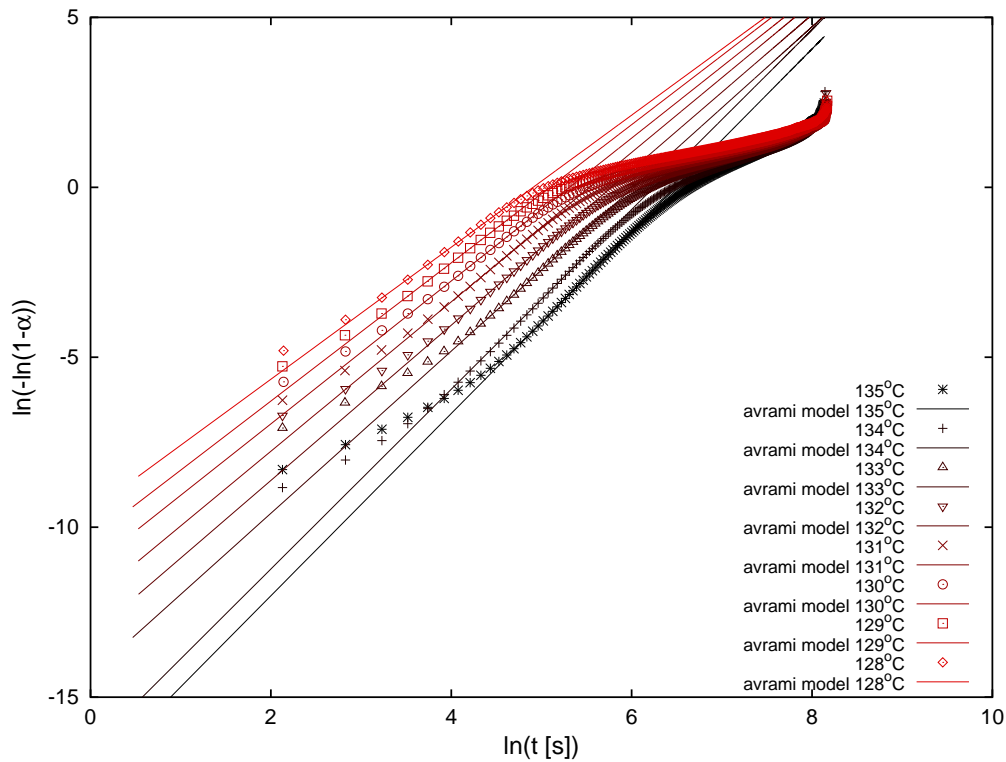


FIGURE B.4 – Évolution de la fraction cristallisée au cours du temps - MR10MX0

FIGURE B.5 –  $\ln(-\ln(1-\alpha))$  versus  $\ln(t)$  pour différentes températures d'isotherme et régression linéaire sur l'intervalle la plus pertinente - PPR10232



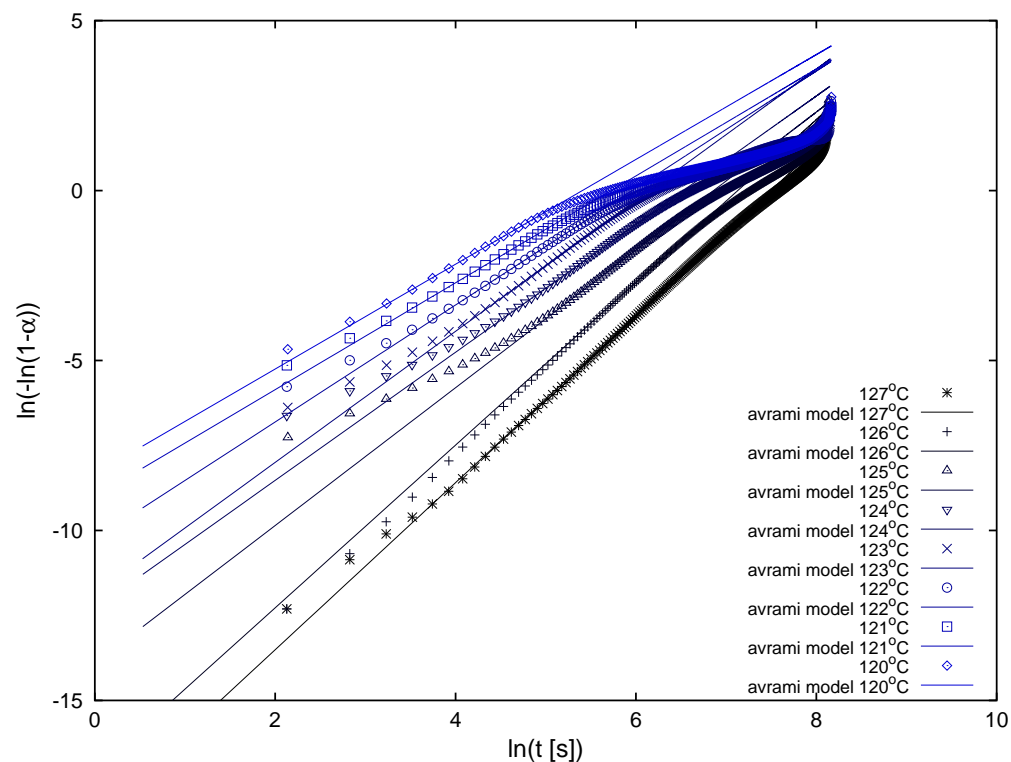


FIGURE B.6 –  $\ln(-\ln(1-\alpha))$  versus  $\ln(t)$  pour différentes températures d'isotherme et régression linéaire sur l'intervalle la plus pertinente - MR10MX0

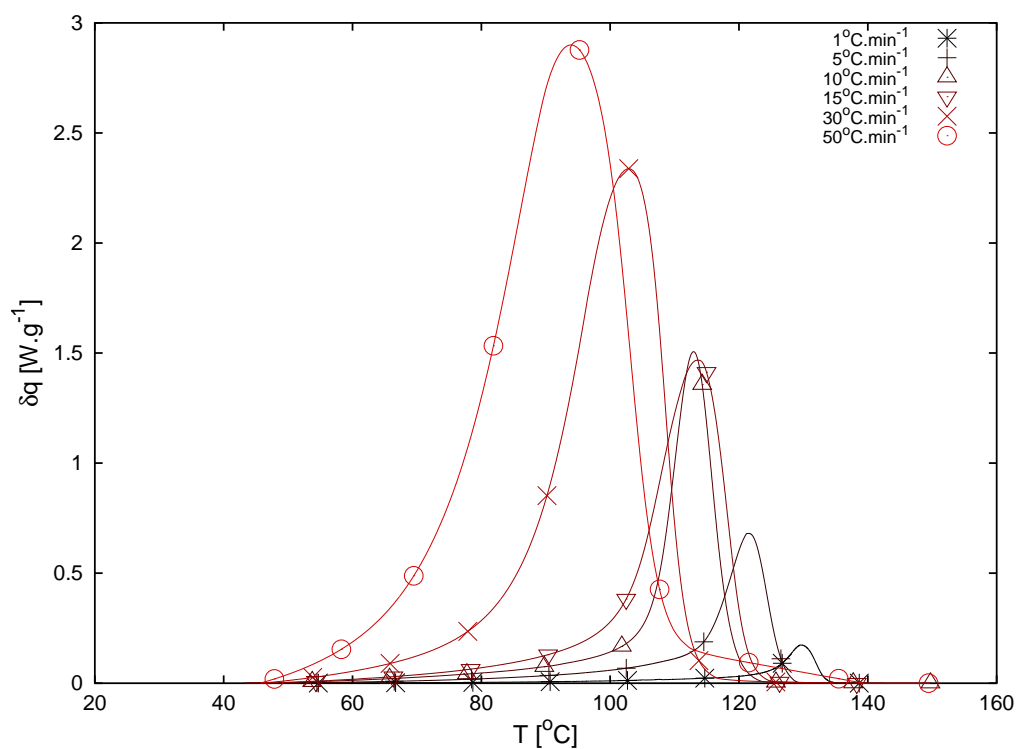


FIGURE B.7 – Résultats DSC pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232

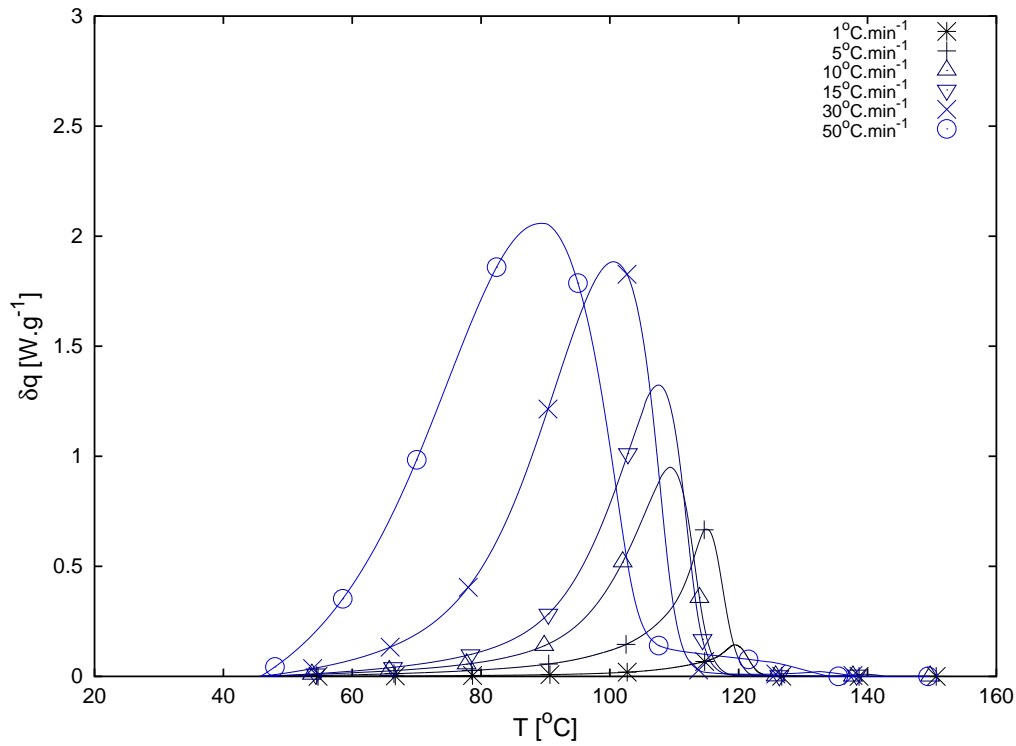


FIGURE B.8 – Résultats DSC pour différentes vitesses de refroidissement - MR10MX0

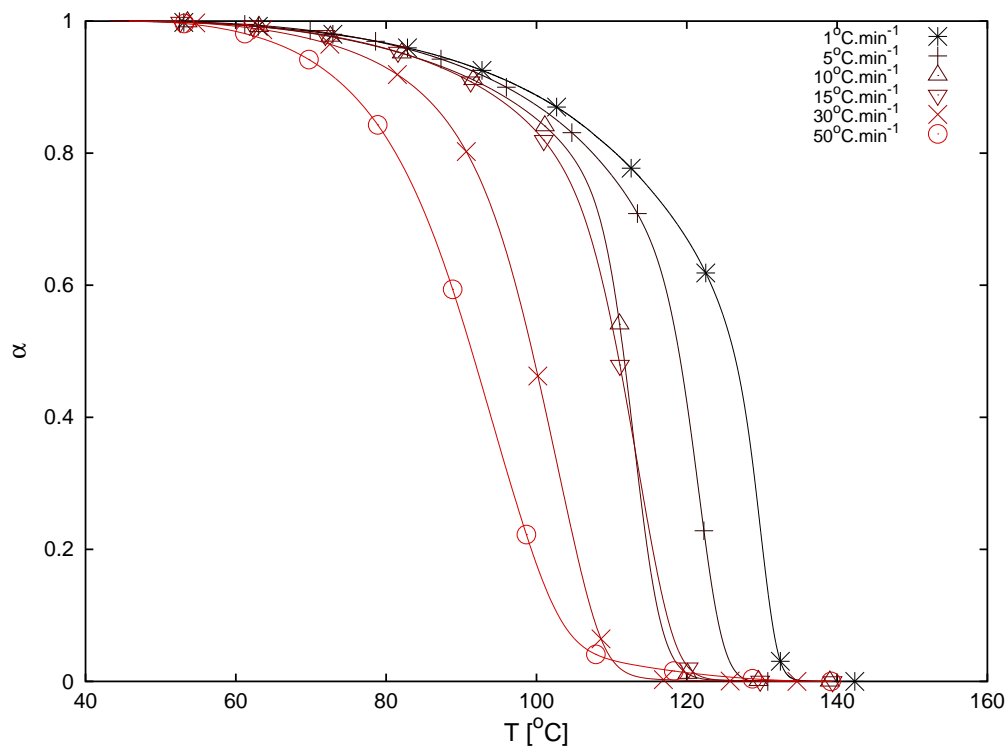


FIGURE B.9 –  $\alpha$  fonction de la température pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232

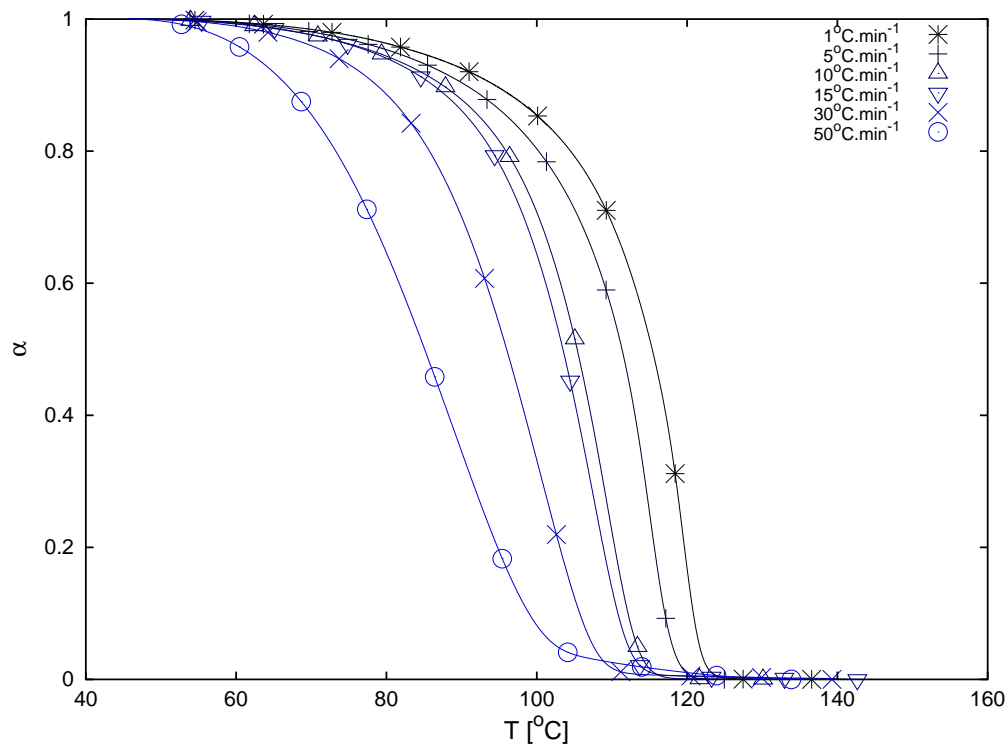


FIGURE B.10 –  $\alpha$  fonction de la température pour différentes vitesses de refroidissement - MR10MX0

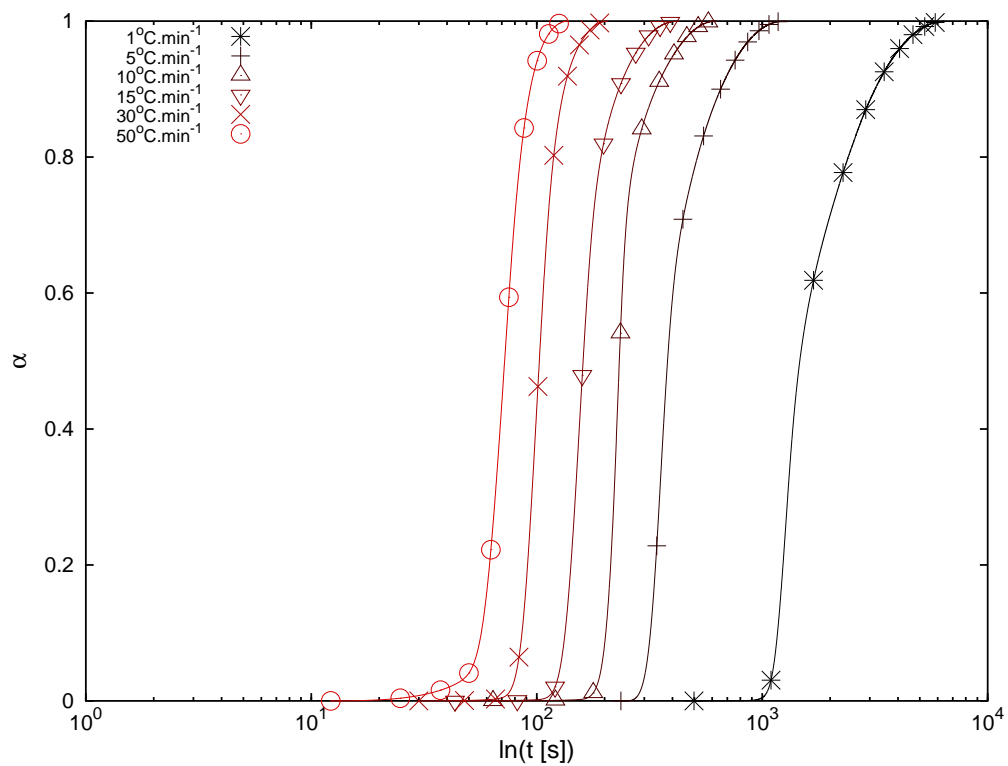


FIGURE B.11 –  $\alpha$  fonction du temps pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232

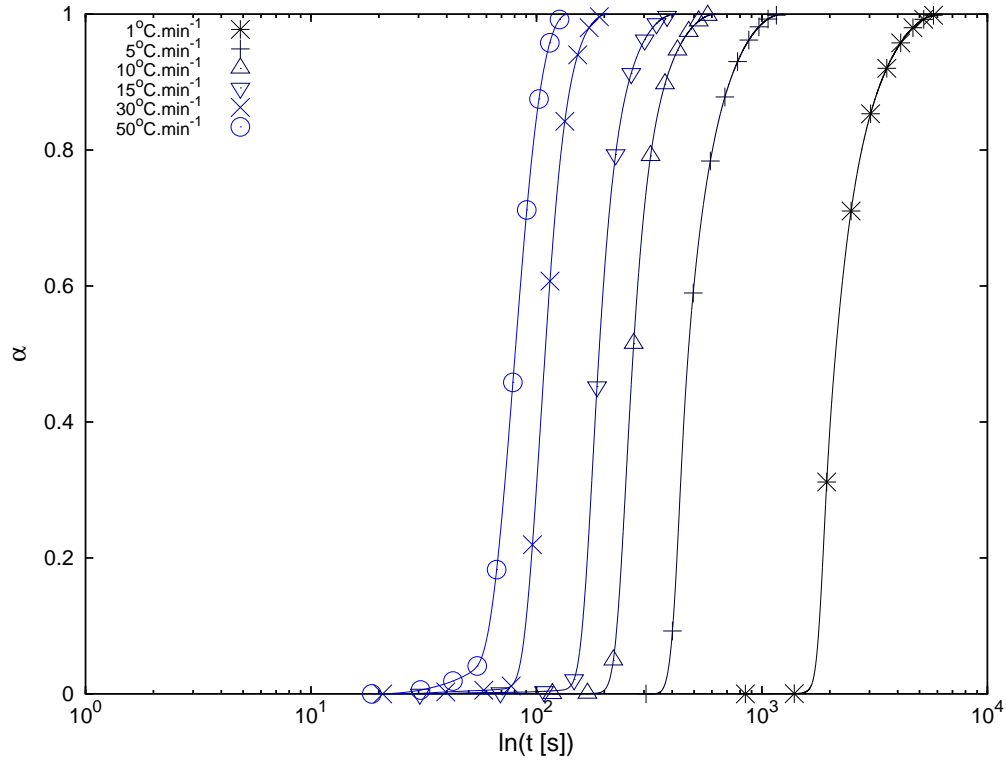


FIGURE B.12 –  $\alpha$  fonction du temps pour différentes vitesses de refroidissement - MR10MX0

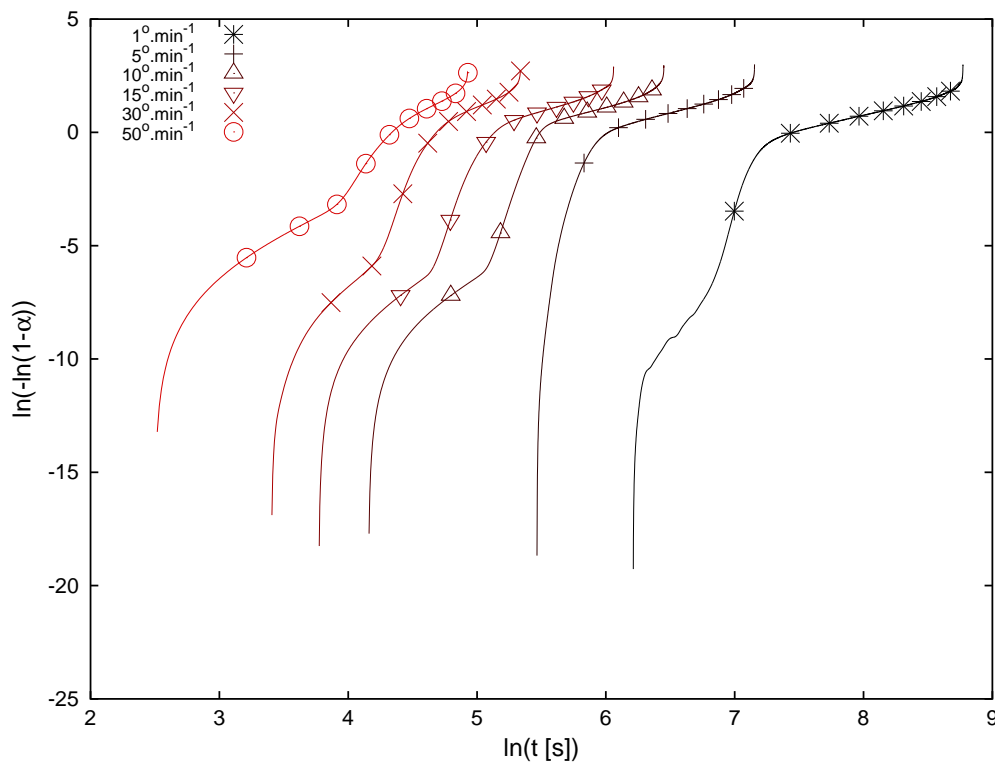


FIGURE B.13 –  $\ln(-\ln(1-\alpha))$  versus  $\ln(t)$  pour différentes vitesses de refroidissement - PPR10232

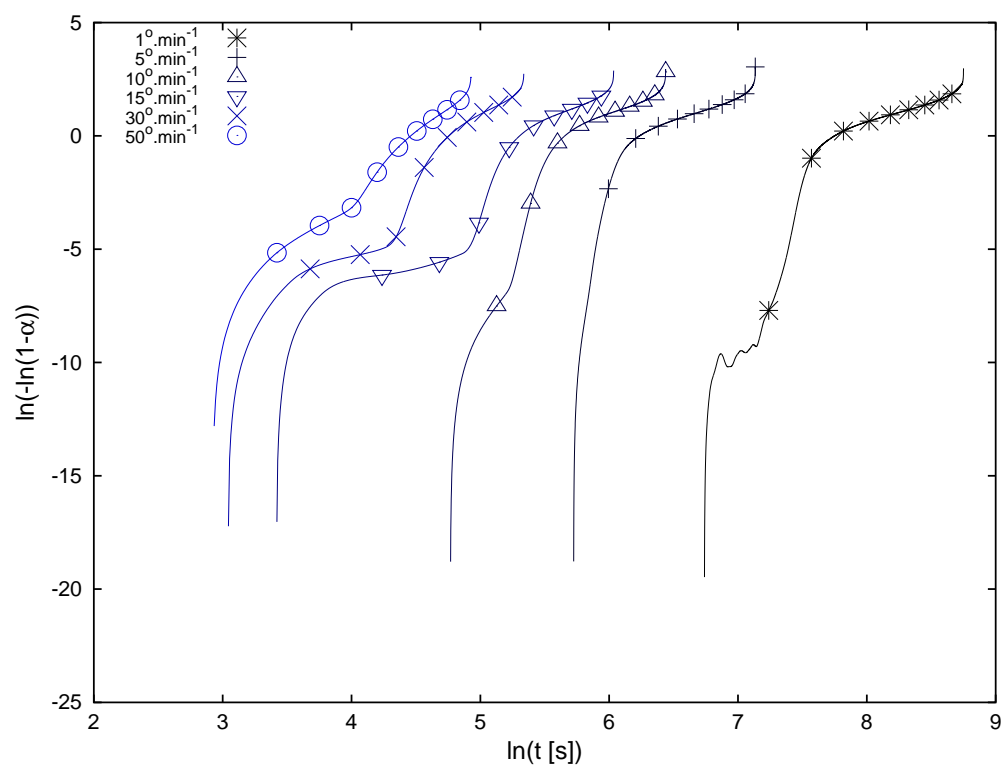


FIGURE B.14 –  $\ln(-\ln(1-\alpha))$  versus  $\ln(t)$  pour différentes vitesses de refroidissement - MR10MX0

# Annexe C

## Annexes : Étude rhéologique

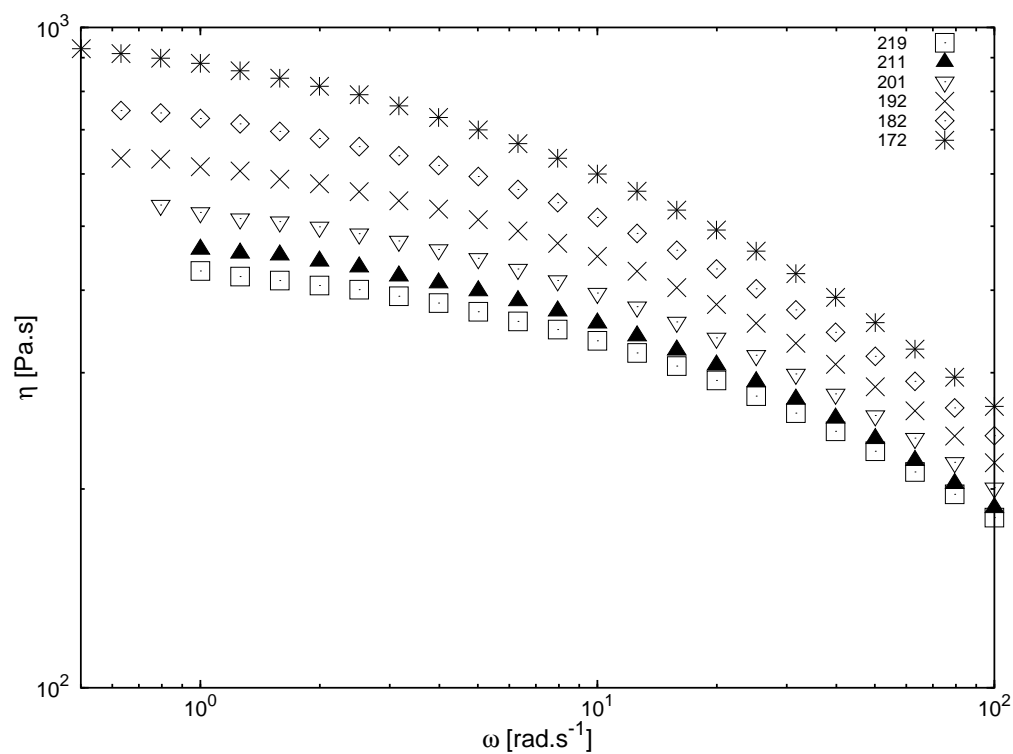


FIGURE C.1 – Courbes de viscosité obtenues à différentes températures par balayage en fréquences - PPR10232

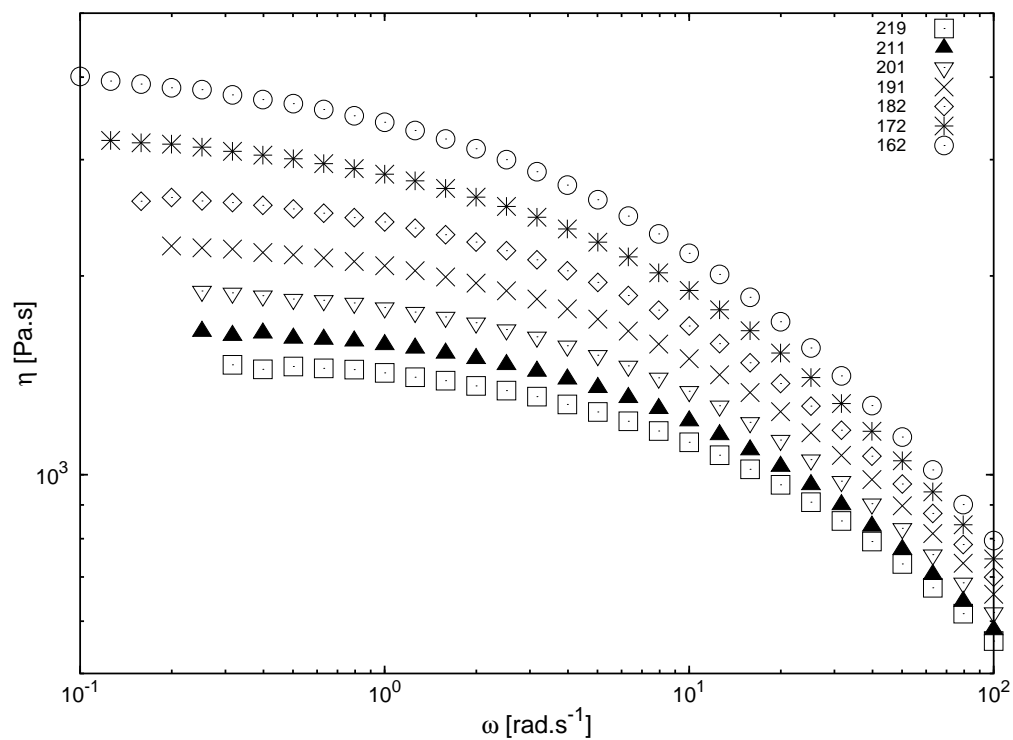


FIGURE C.2 – Courbes de viscosité obtenues à différentes températures par balayage en fréquences - MR10MX0

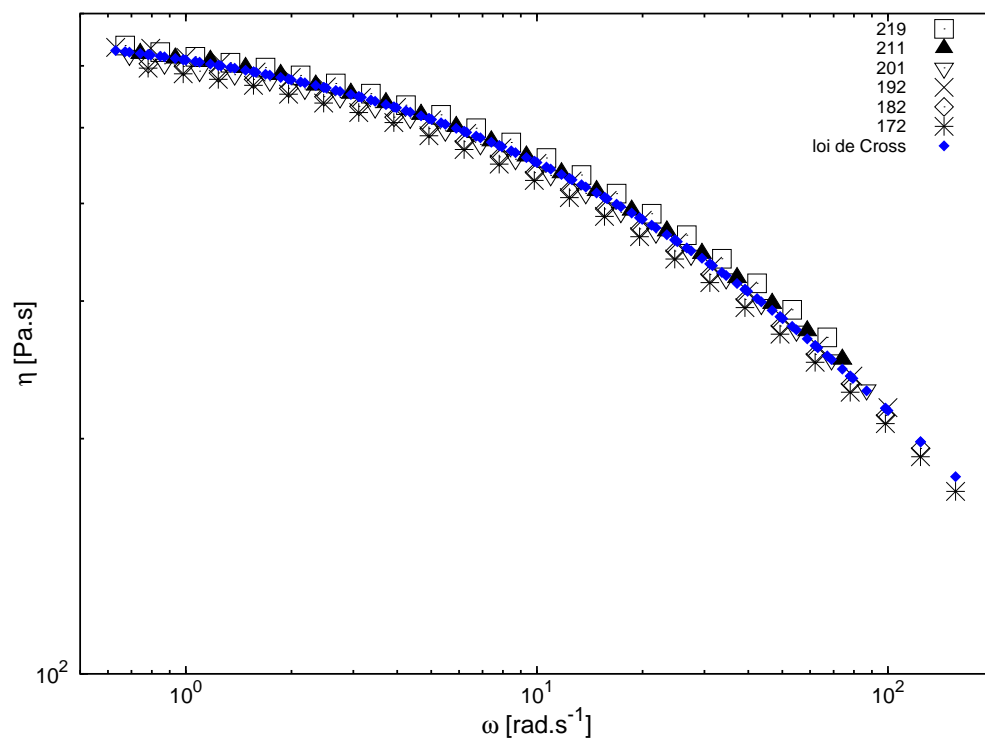


FIGURE C.3 – Courbe maîtresse et la loi de Cross fittée - PPR10232

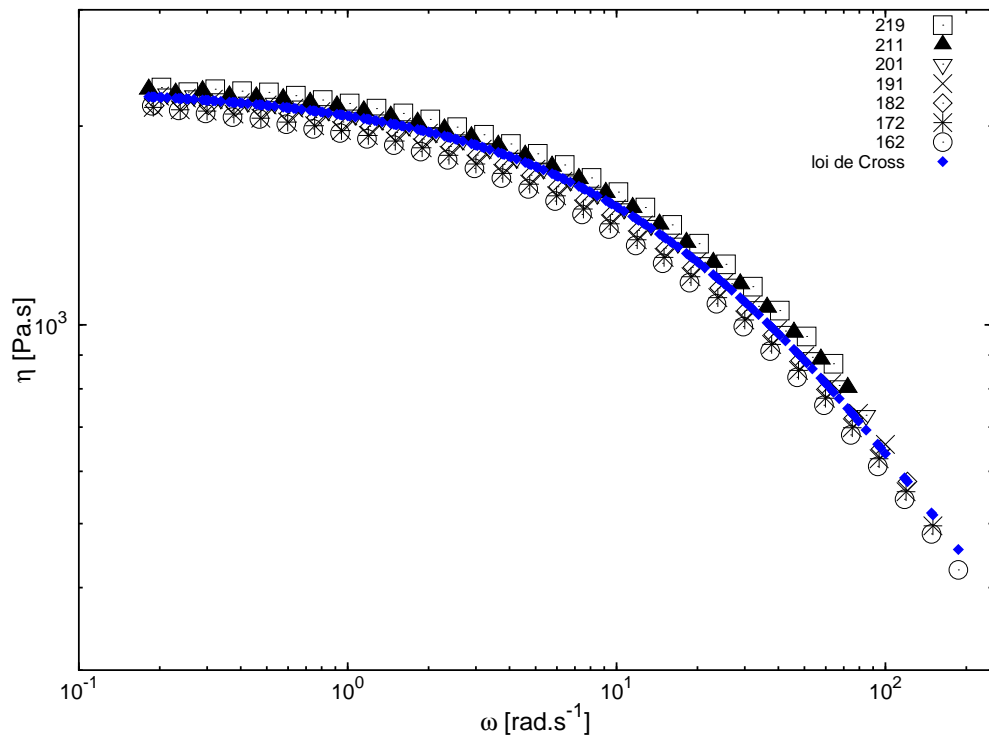


FIGURE C.4 – Courbe maîtresse et la loi de Cross fittée - MR10MX0

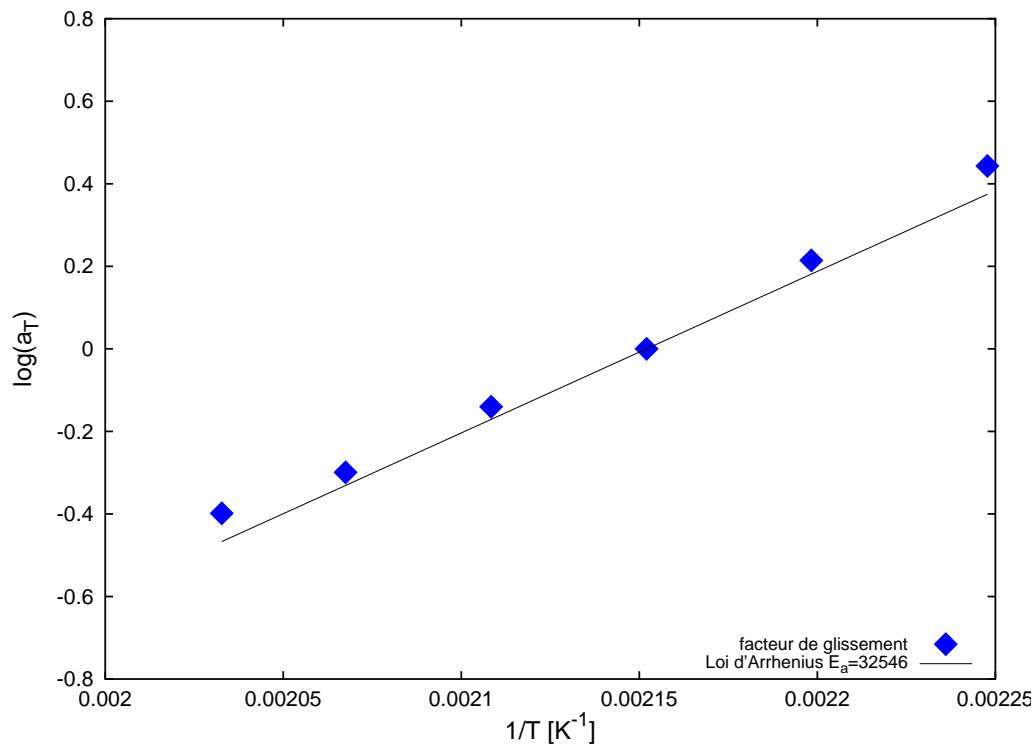


FIGURE C.5 – Facteurs de glissement et la loi d'Arrhénius fittée - PPR10232



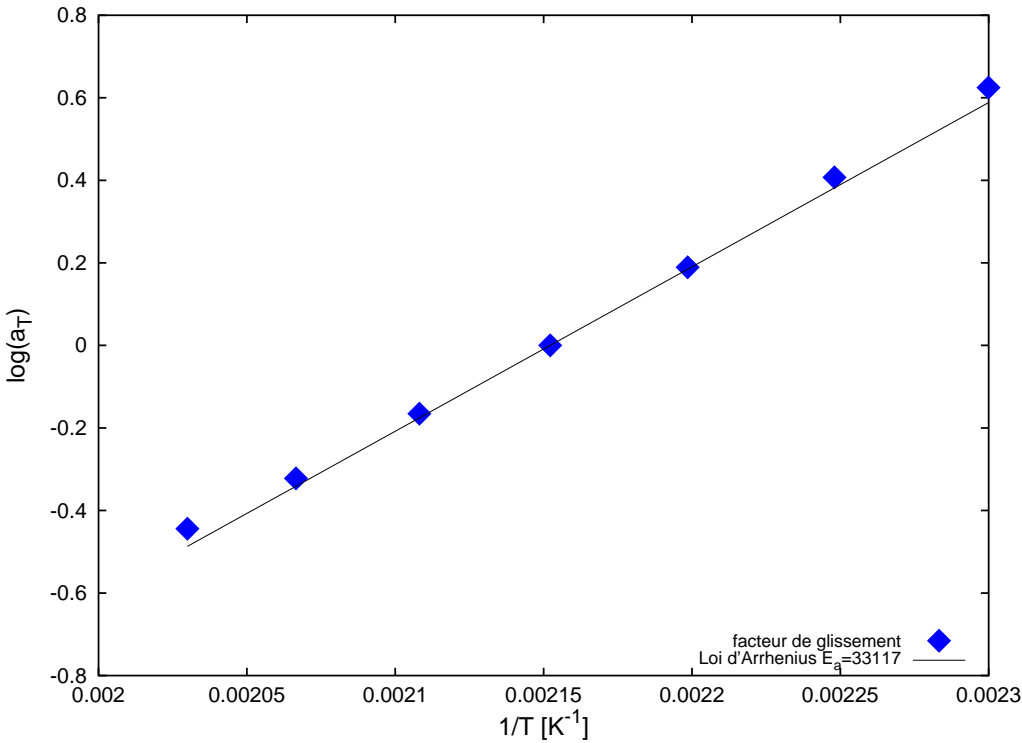


FIGURE C.6 – Facteurs de glissement et la loi d'Arrhénius fittée - MR10MX0

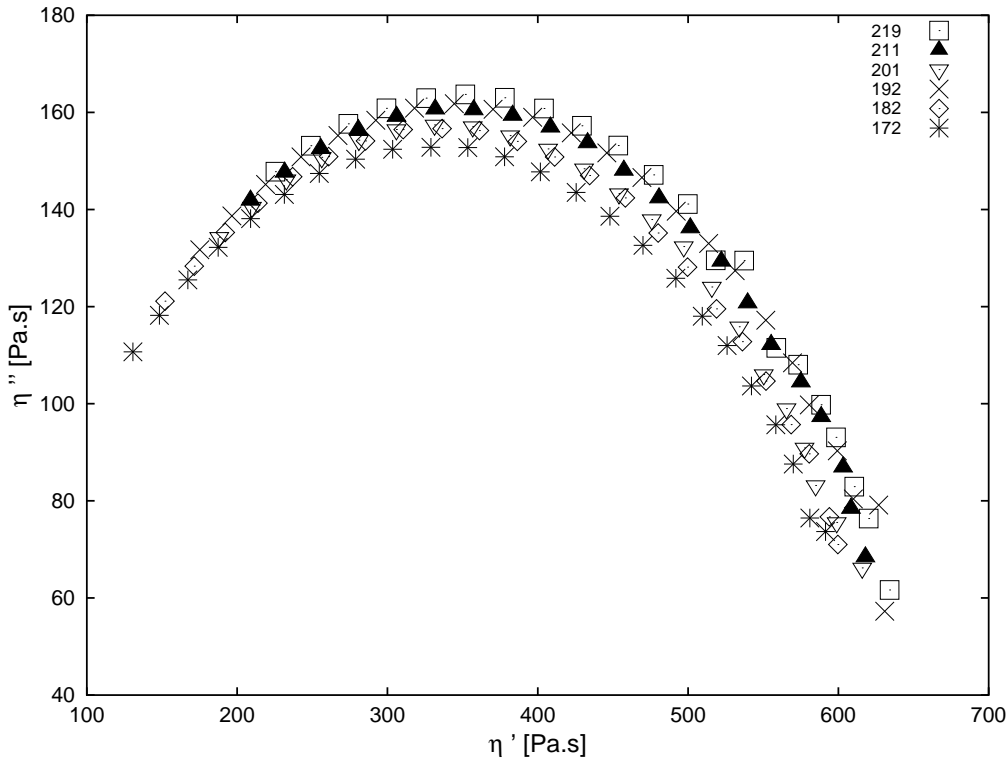


FIGURE C.7 – Diagramme Cole-Cole - PPR10232

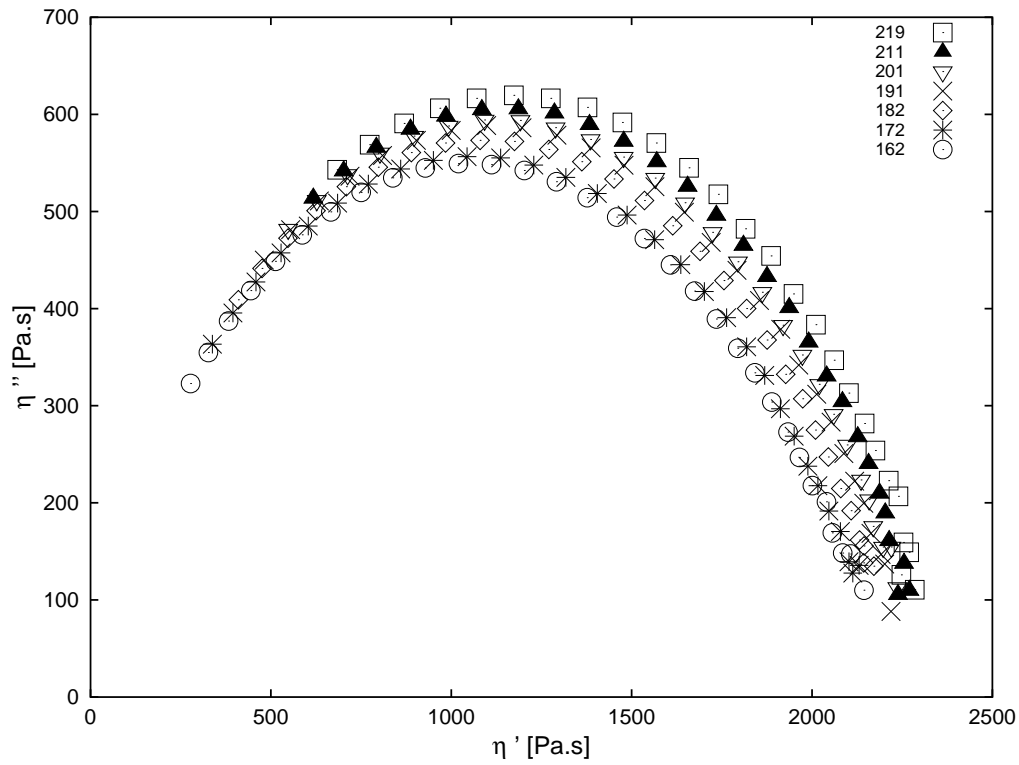


FIGURE C.8 – Diagramme Cole-Cole - MR10MX0

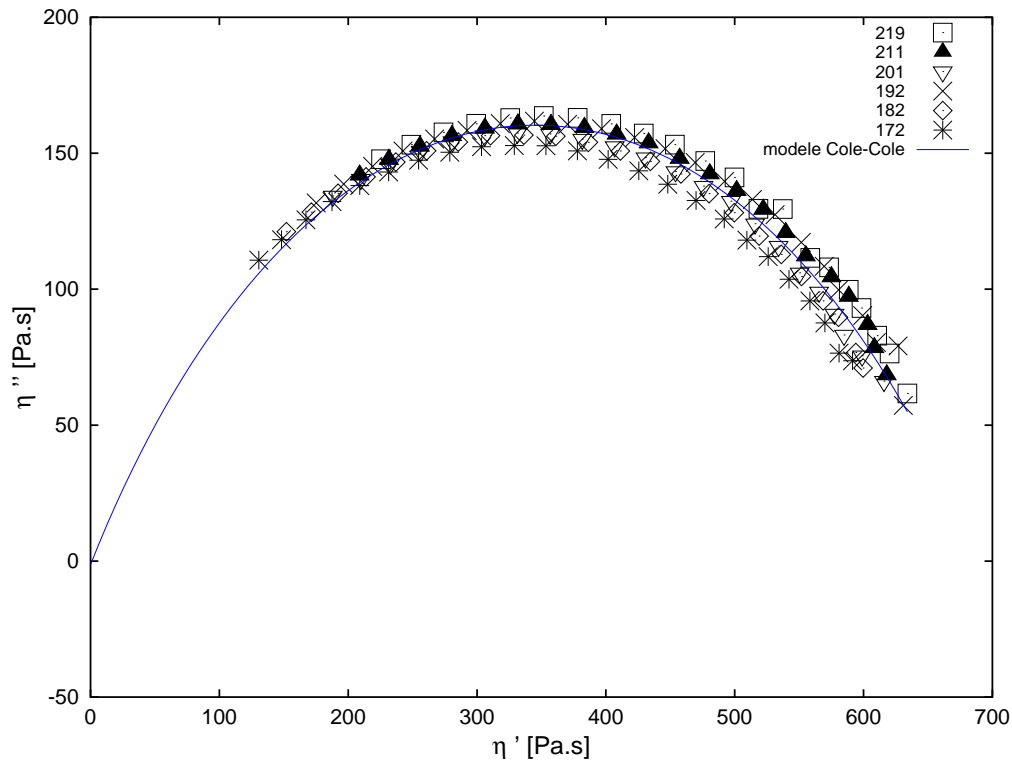


FIGURE C.9 – Diagramme Cole-Cole et arc de cercle modèle - PPR10232

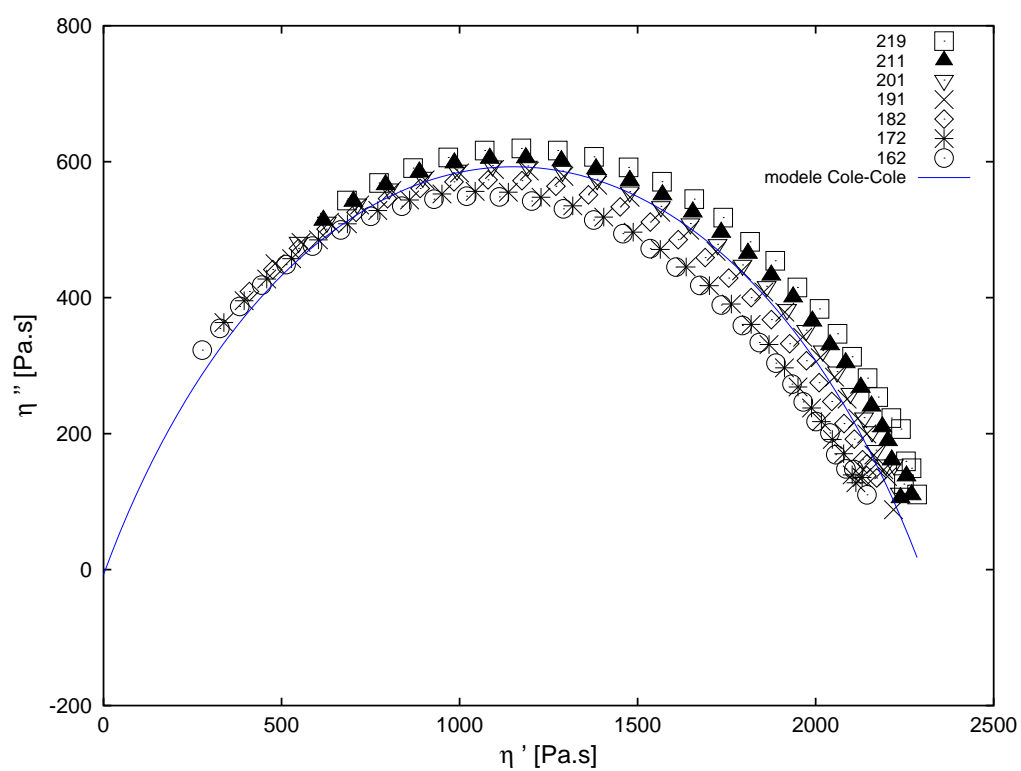


FIGURE C.10 – Diagramme Cole-Cole et arc de cercle modèle - MR10MX0

# Annexe D

## Résultats RDA

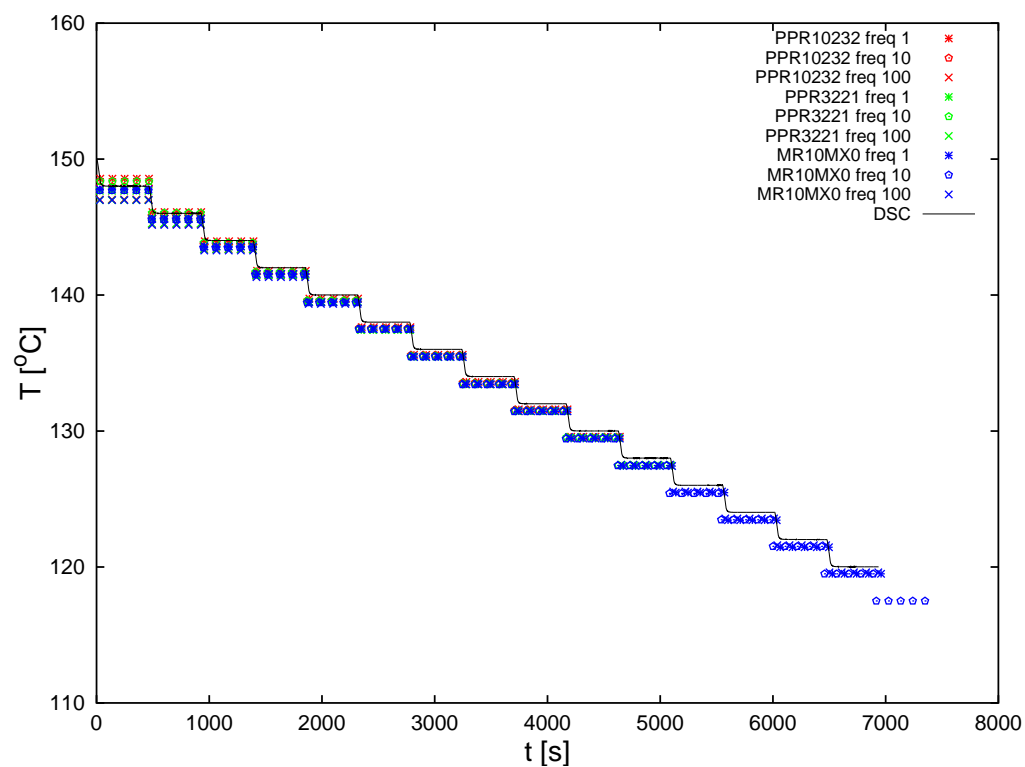


FIGURE D.1 – Évolution de la température pour les différents essais RDA pour un temps d'attente de 300s (marqueurs couleurs) - Températures imposées en DSC (ligne noire)

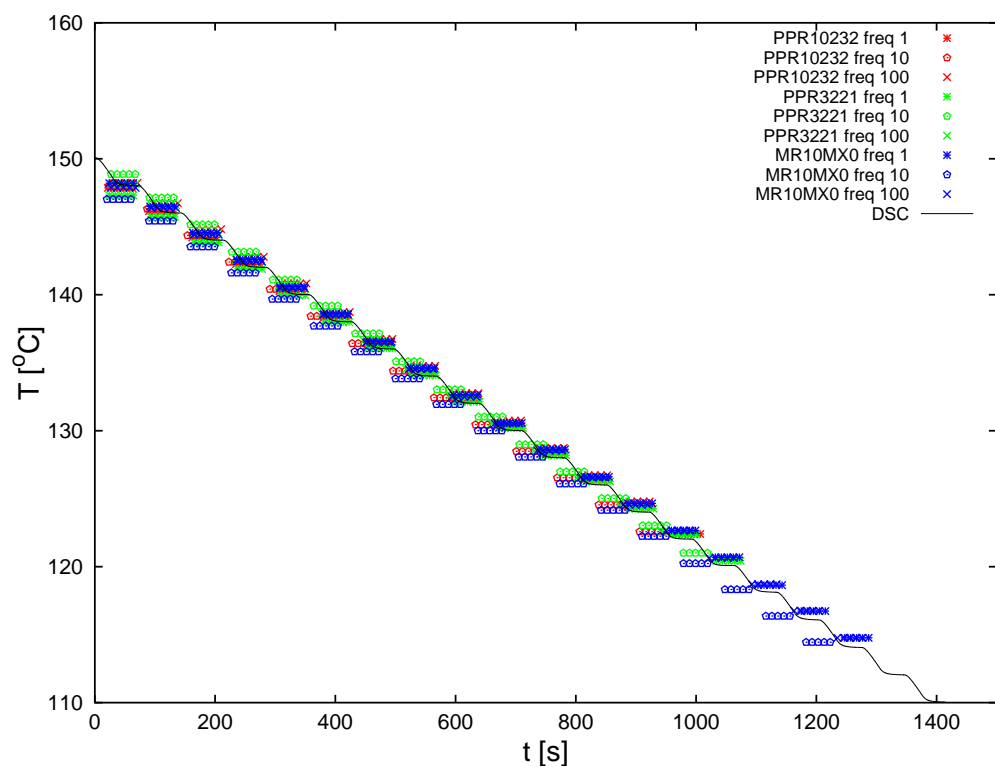


FIGURE D.2 – Évolution de la température pour les différents essais RDA pour un temps d'attente de 30s (marqueurs couleurs) - Températures imposées en DSC (ligne noire)

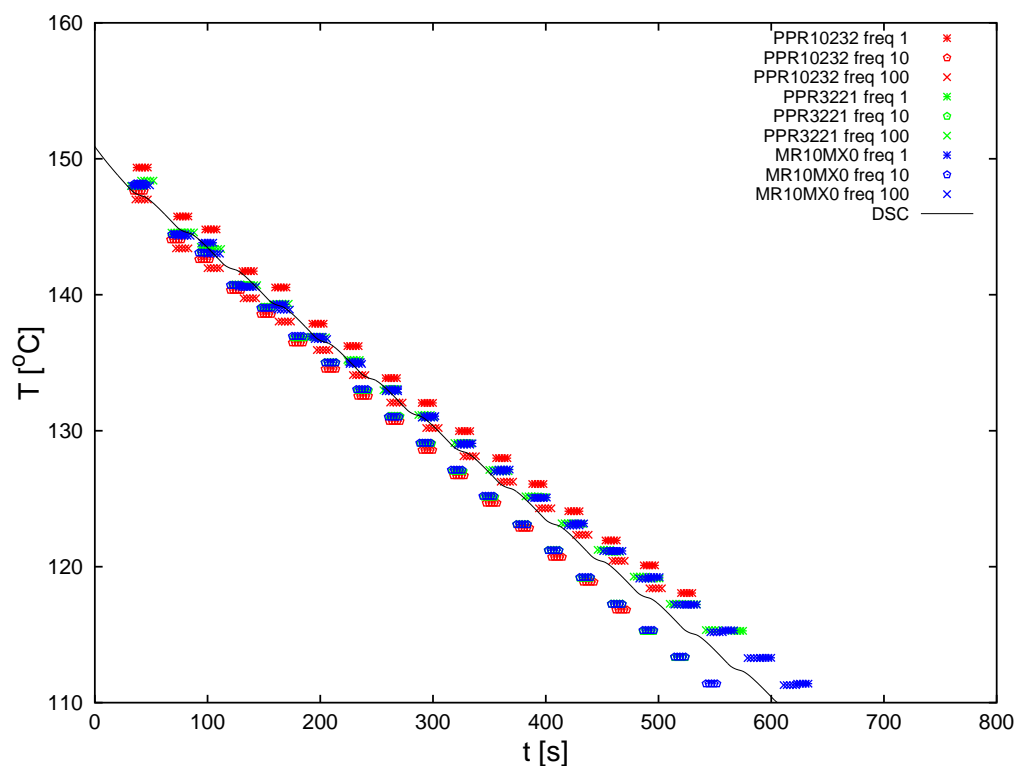


FIGURE D.3 – Évolution de la température pour les différents essais RDA pour un temps d'attente de 3s (marqueurs couleurs) - Températures imposées en DSC (ligne noire)

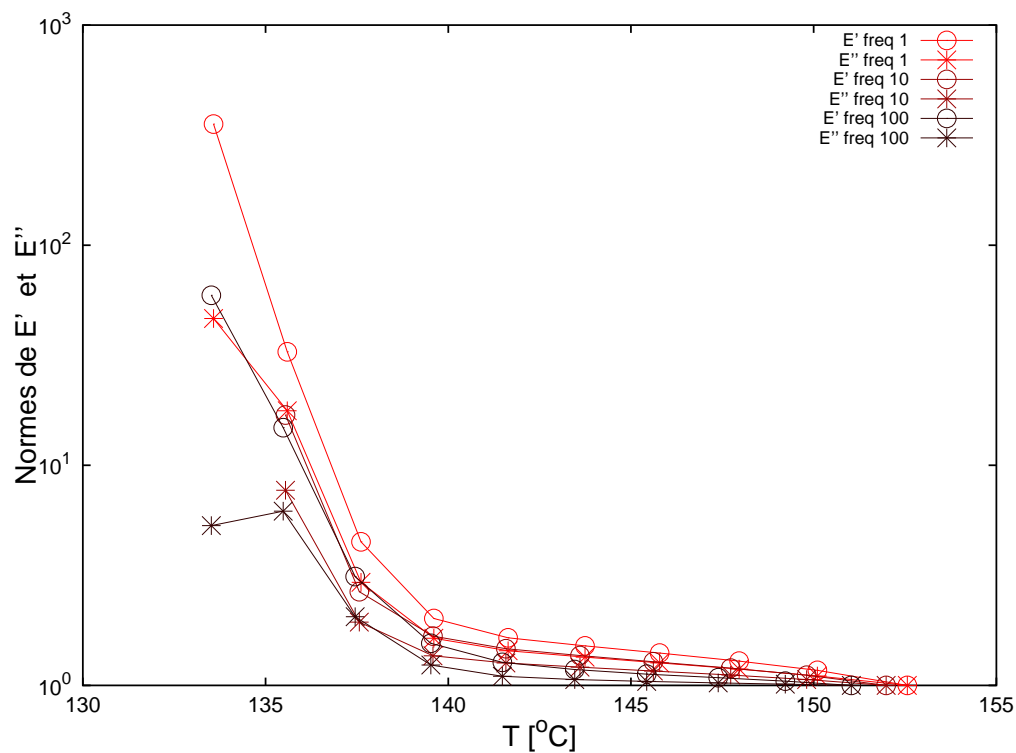


FIGURE D.4 – Résultats RDA - PPR10232 - différentes fréquences - temps d'attente=300s

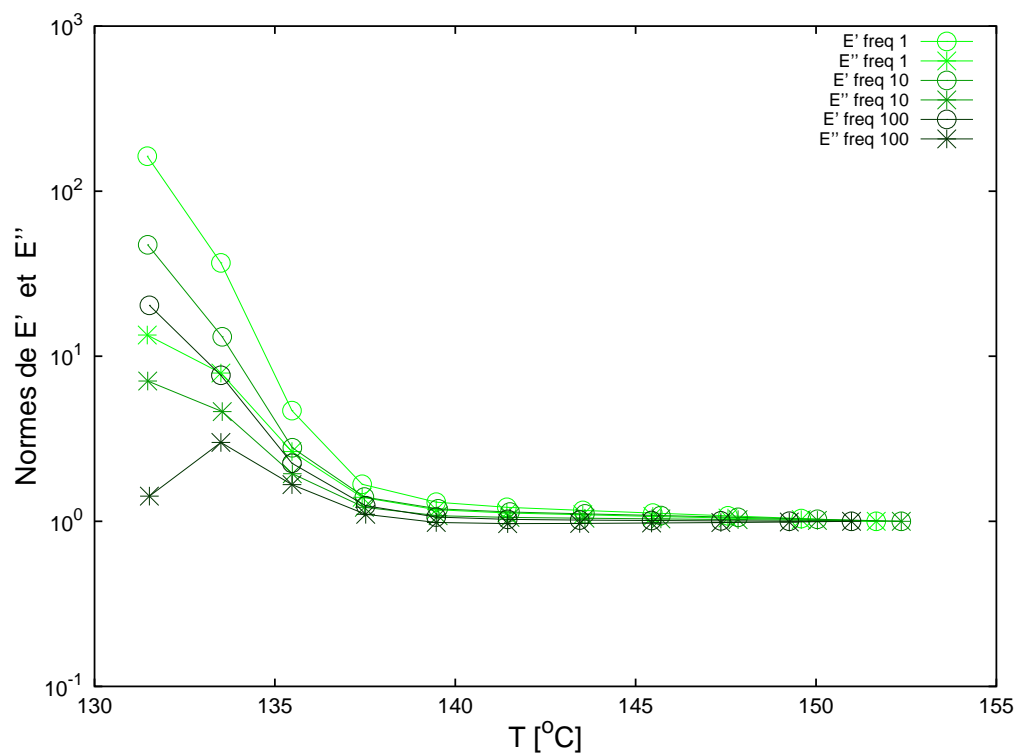


FIGURE D.5 – Résultats RDA - PPR3221 - différentes fréquences - temps d'attente=300s

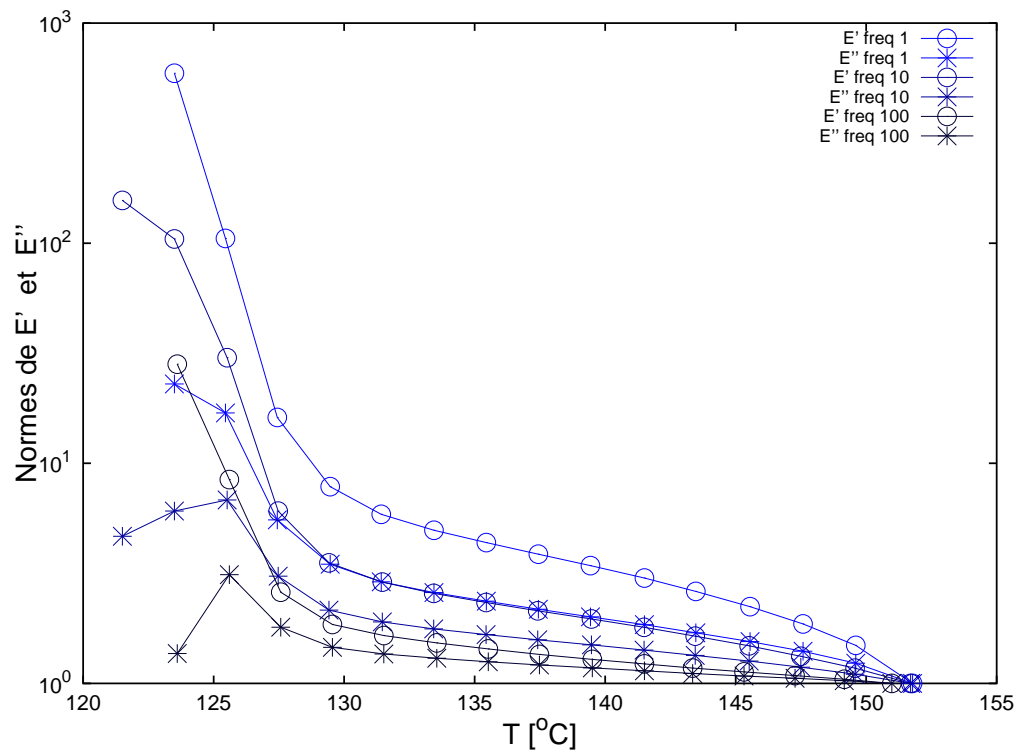


FIGURE D.6 – Résultats RDA - MR10MX0 - différentes fréquences - temps d'attente=300s

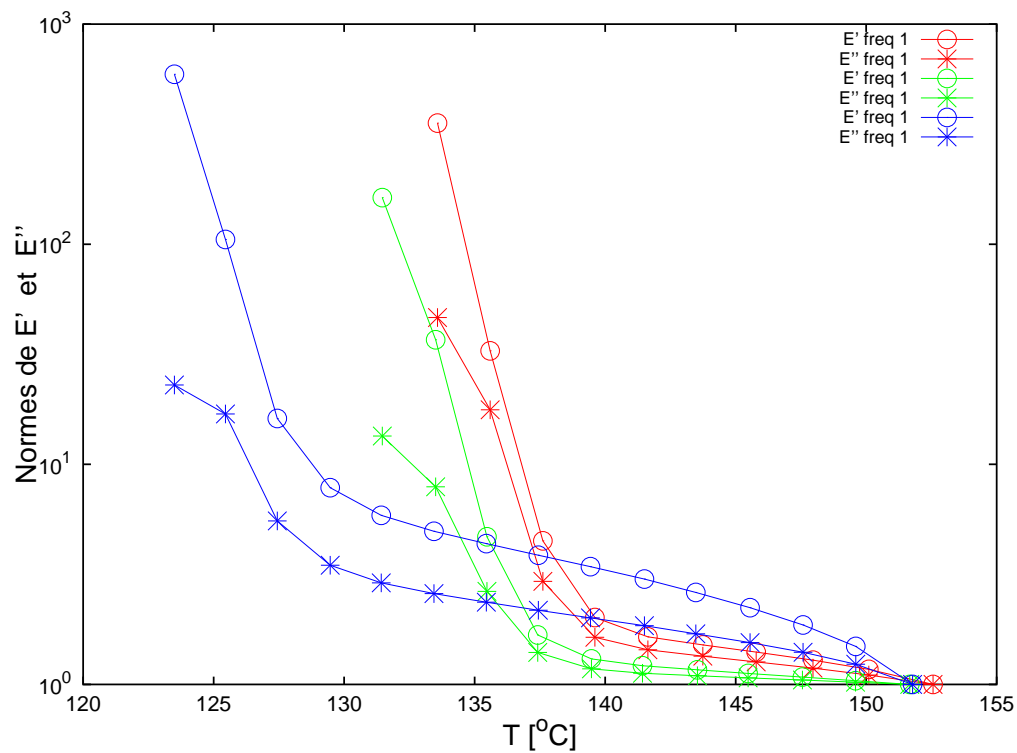


FIGURE D.7 – Résultats RDA - 1rad.s<sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=300s

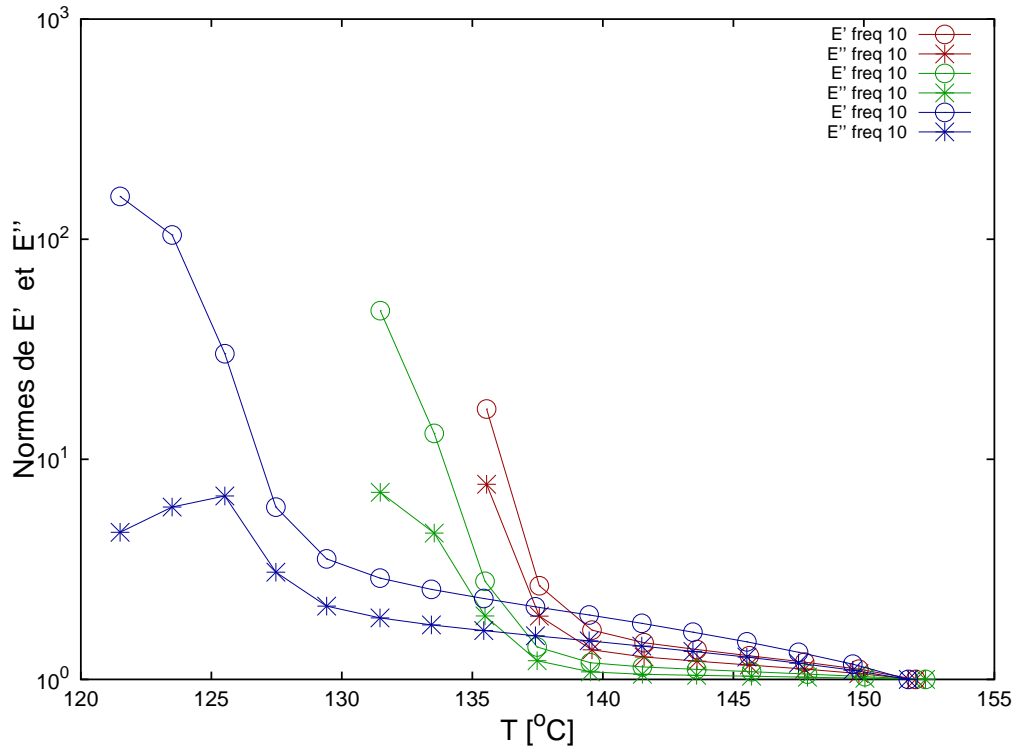


FIGURE D.8 – Résultats RDA - 10rad.s<sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=300s

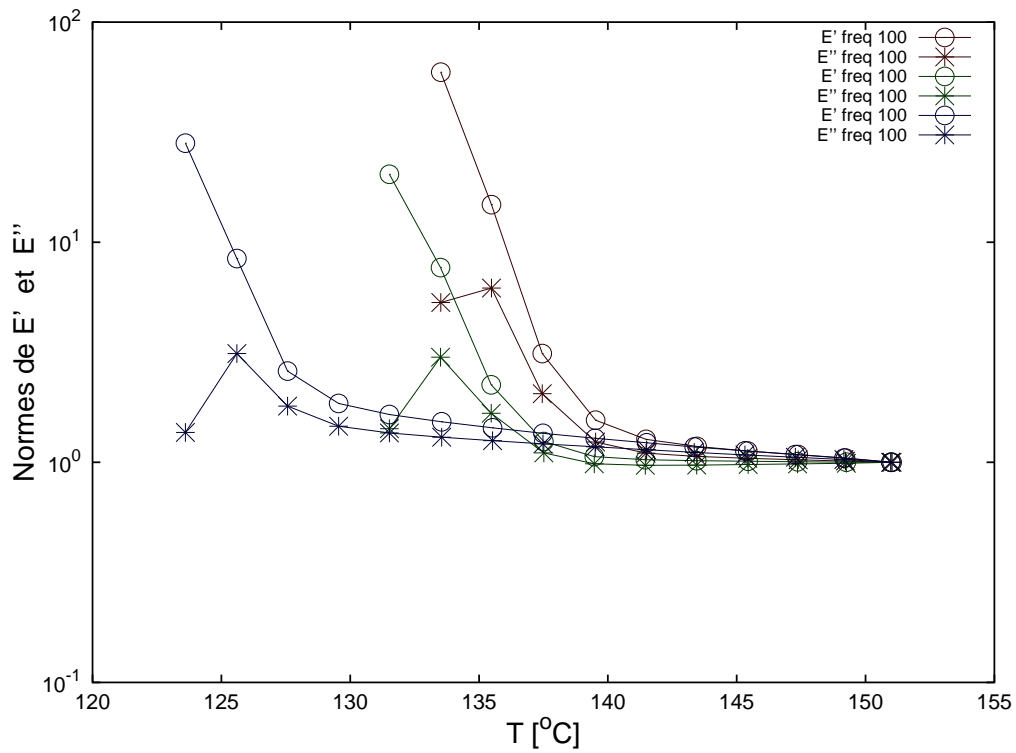


FIGURE D.9 – Résultats RDA - 100rad.s<sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=300s



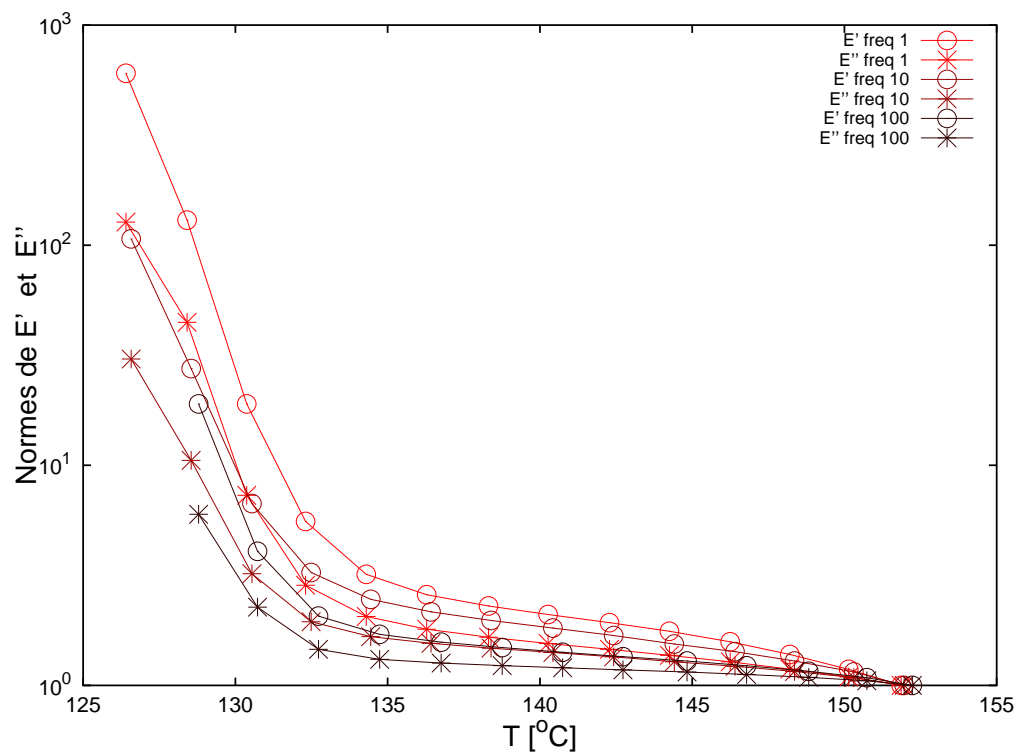


FIGURE D.10 – Résultats RDA - PPR10232 - différentes fréquences - temps d'attente=30s

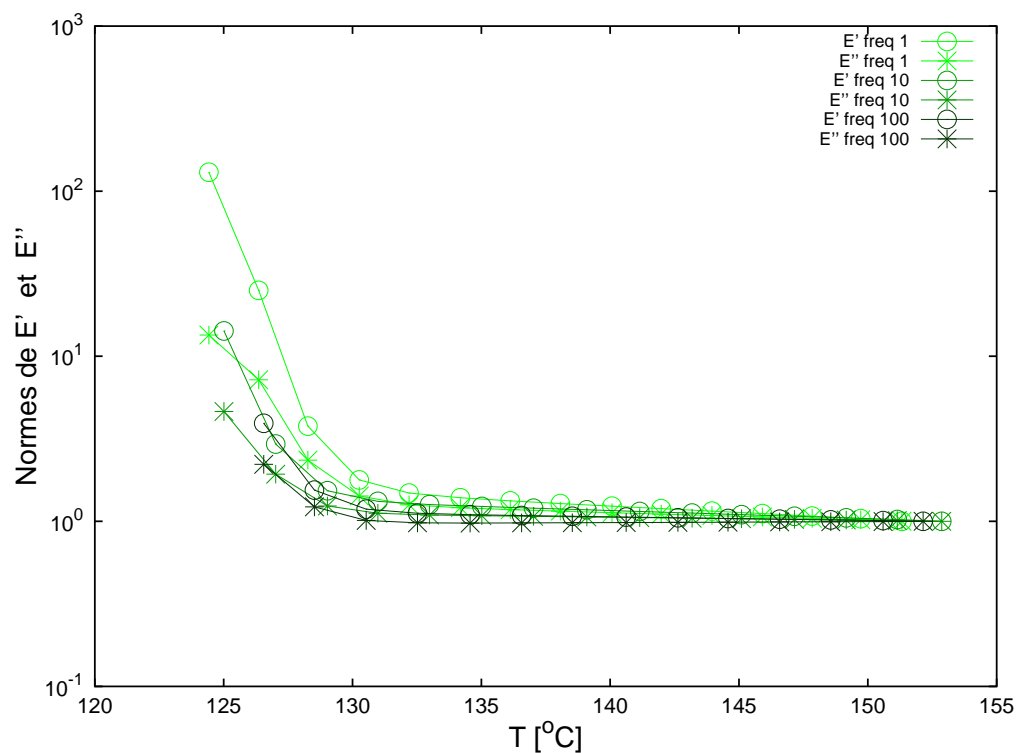


FIGURE D.11 – Résultats RDA - PPR3221 - différentes fréquences - temps d'attente=30s

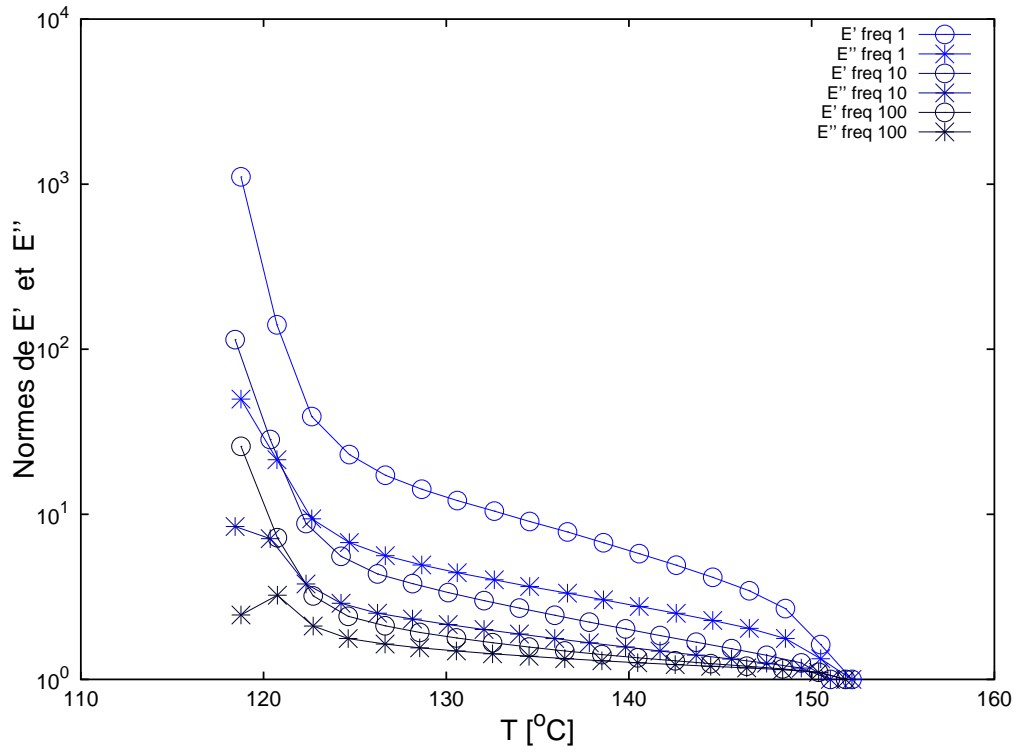


FIGURE D.12 – Résultats RDA - MR10MX0 - différentes fréquences - temps d'attente=30s

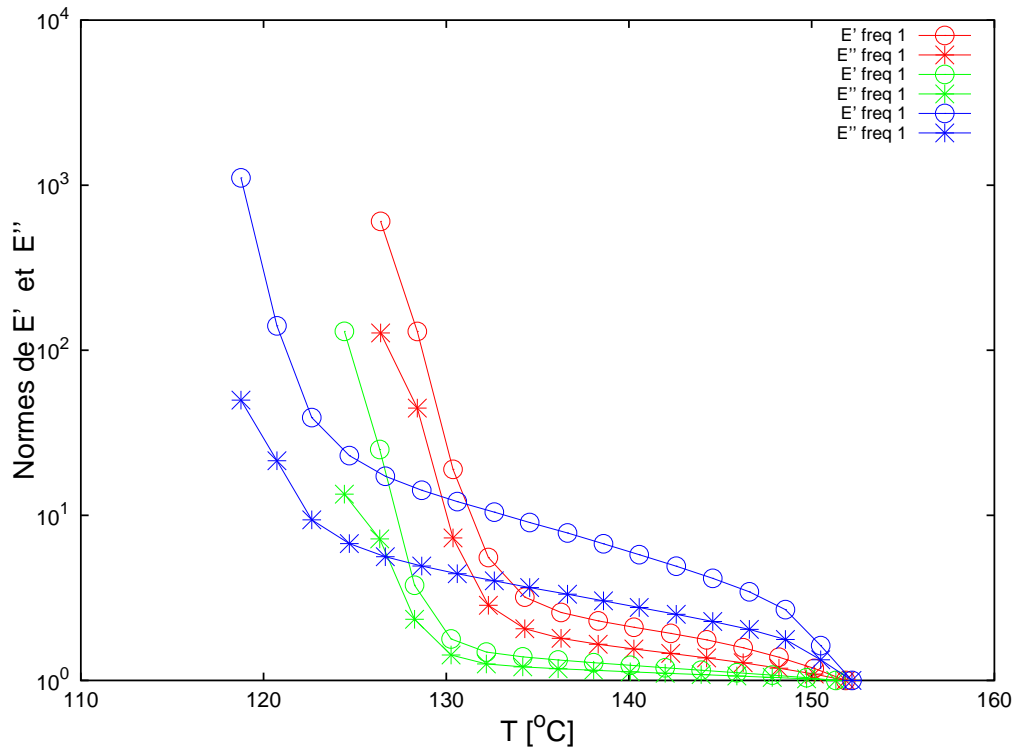


FIGURE D.13 – Résultats RDA - 1rad.s<sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=30s

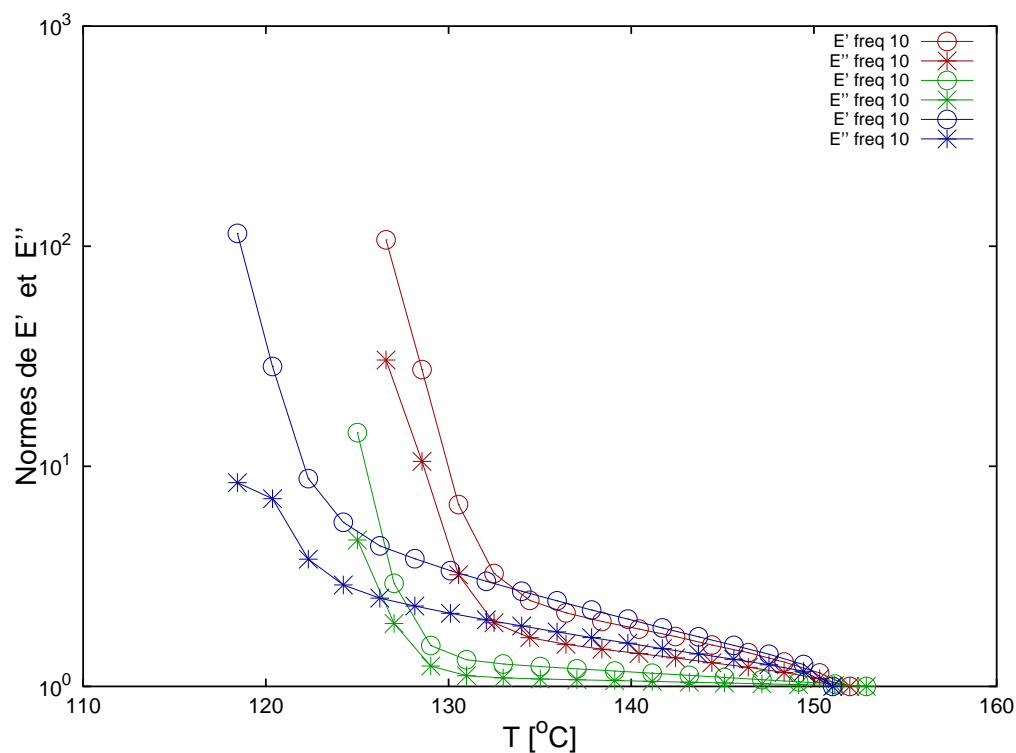


FIGURE D.14 – Résultats RDA - 10rad.s<sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=30s

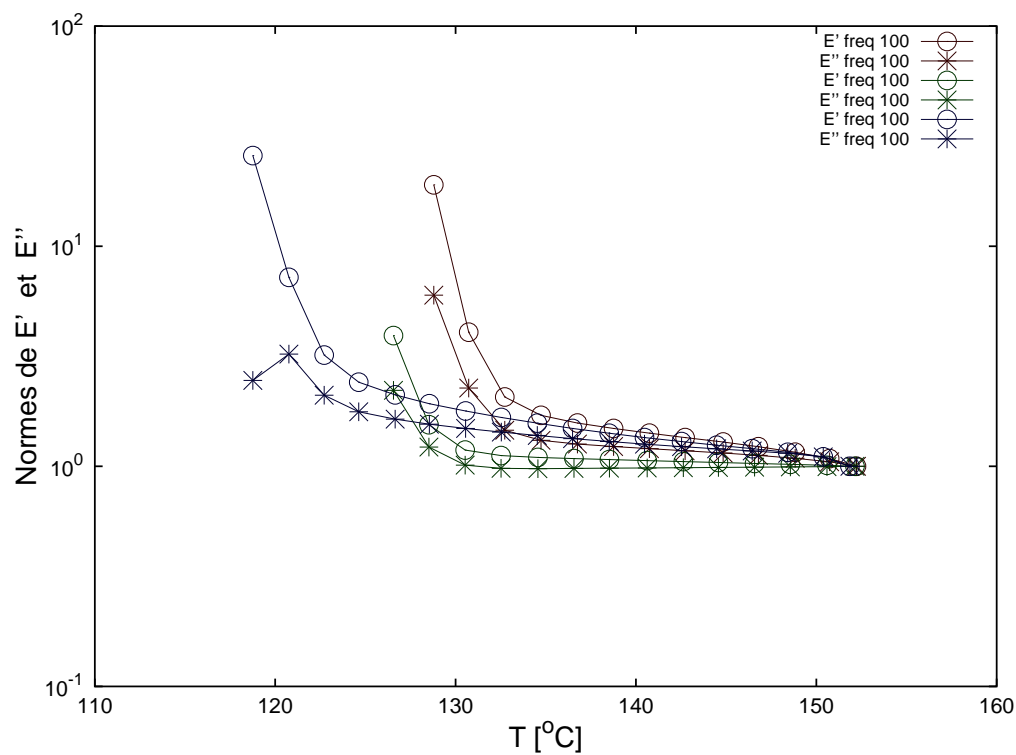


FIGURE D.15 – Résultats RDA - 100rad.s<sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=30s

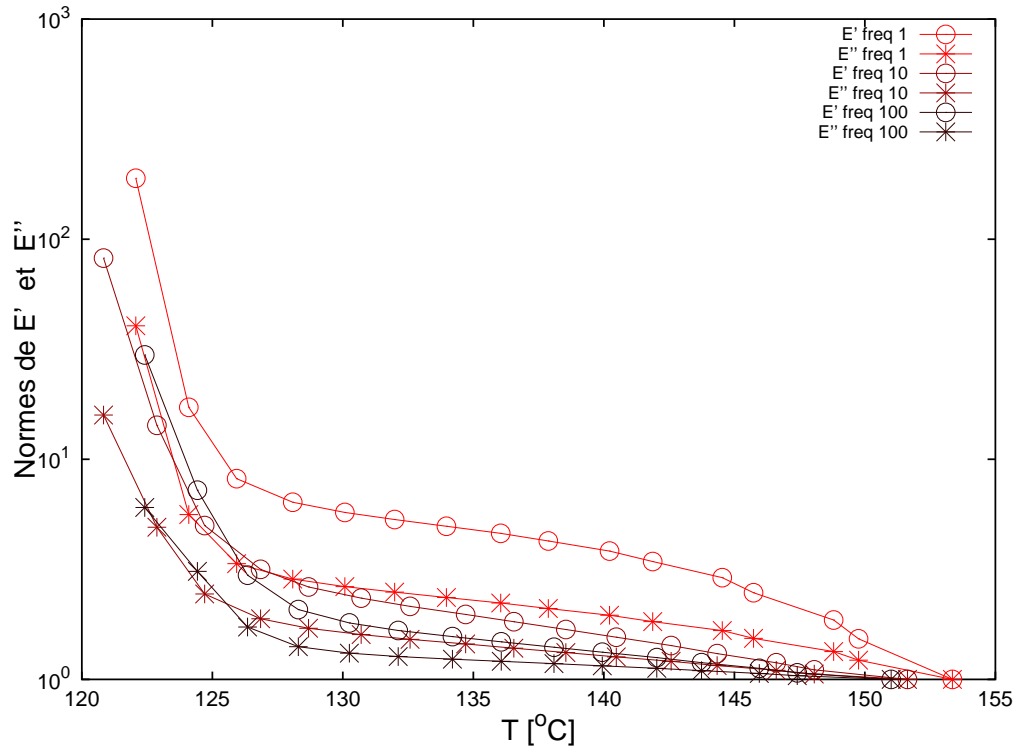


FIGURE D.16 – Résultats RDA - PPR10232 - différentes fréquences - temps d'attente=3s

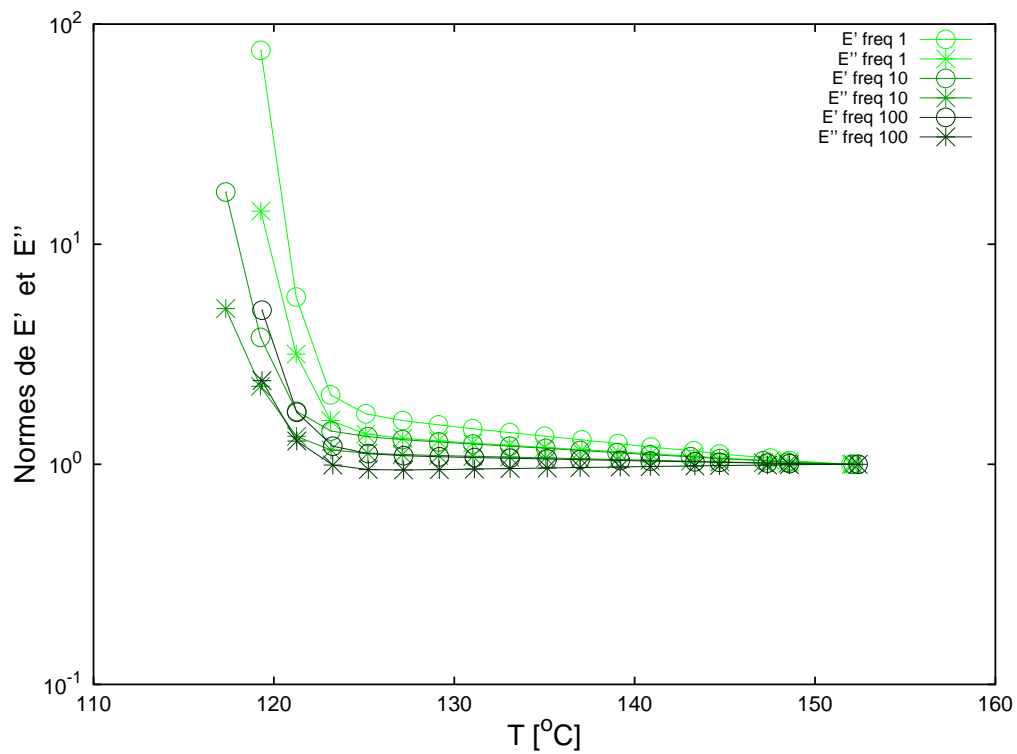


FIGURE D.17 – Résultats RDA - PPR3221 - différentes fréquences - temps d'attente=3s

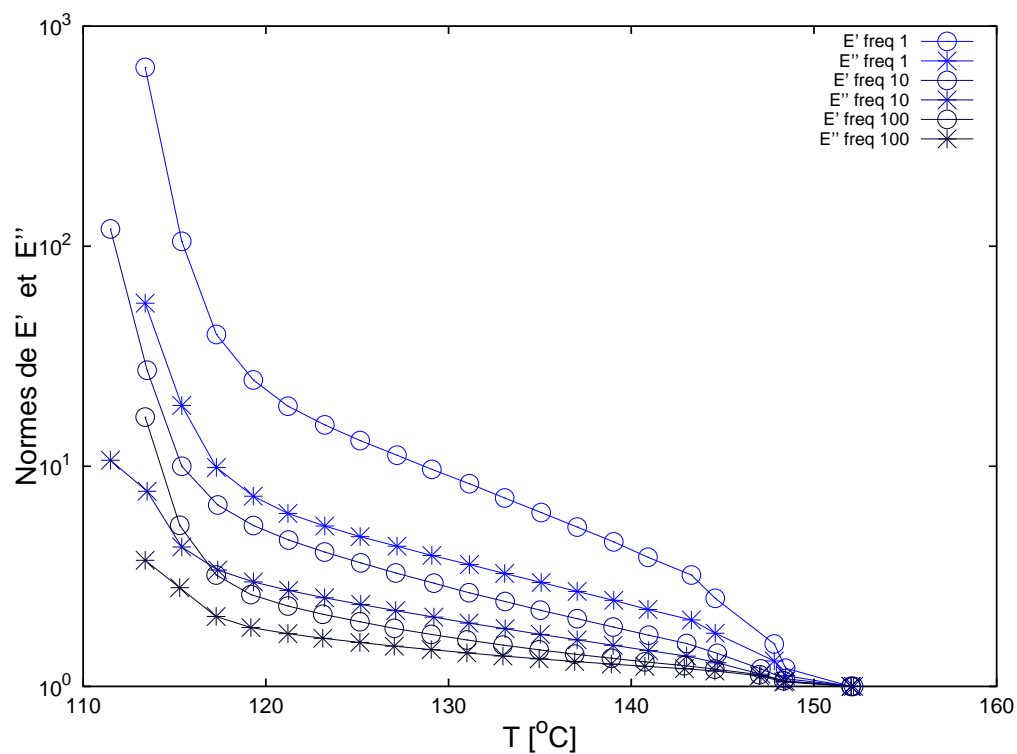


FIGURE D.18 – Résultats RDA - MR10MX0 - différentes fréquences - temps d'attente=3s

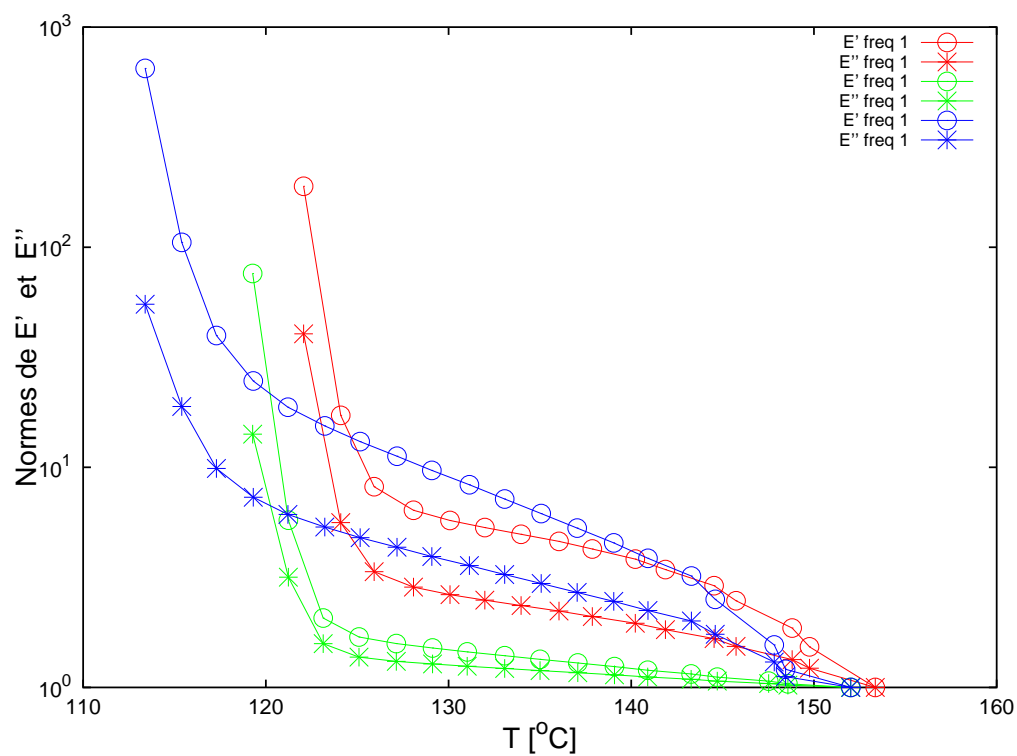


FIGURE D.19 – Résultats RDA - 1rad.s<sup>-1</sup> - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=3s

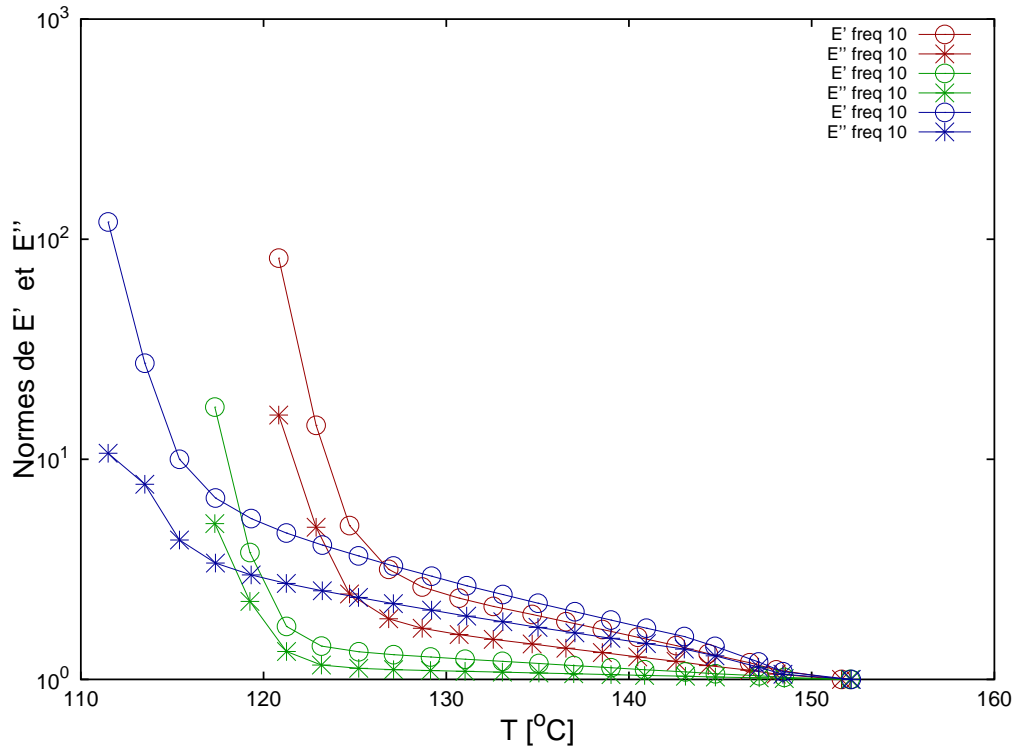


FIGURE D.20 – Résultats RDA -  $10\text{rad.s}^{-1}$  - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=3s

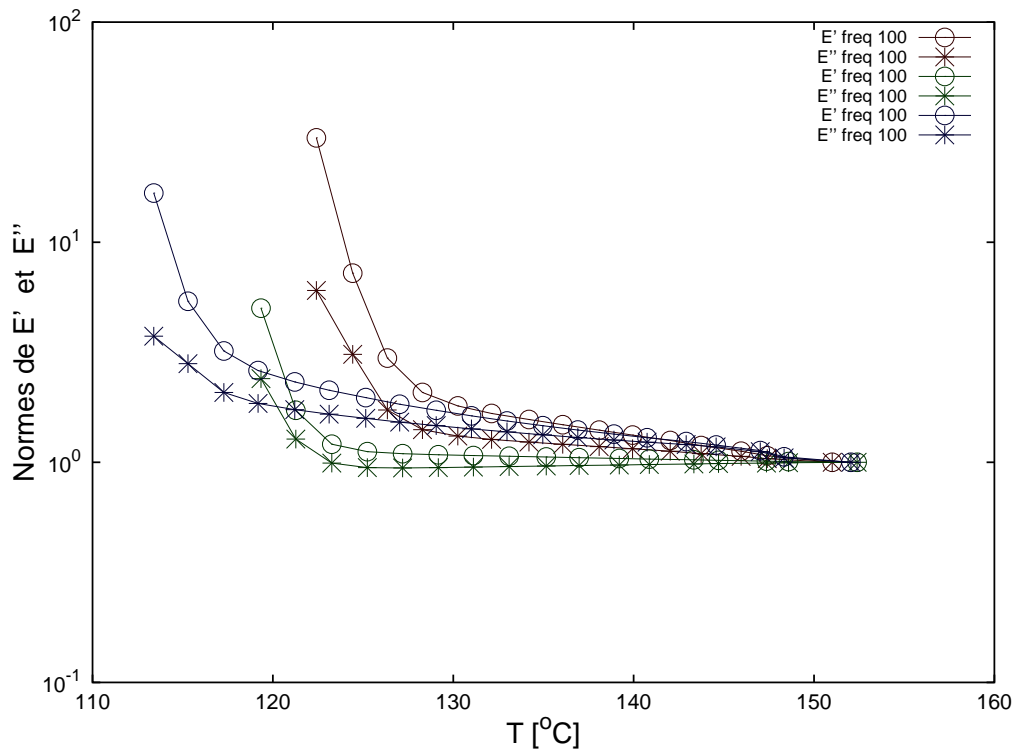


FIGURE D.21 – Résultats RDA -  $100\text{rad.s}^{-1}$  - PPR10232 (rouge) - PPR3221 (vert) - MR10MX0 (bleu) - temps d'attente=3s

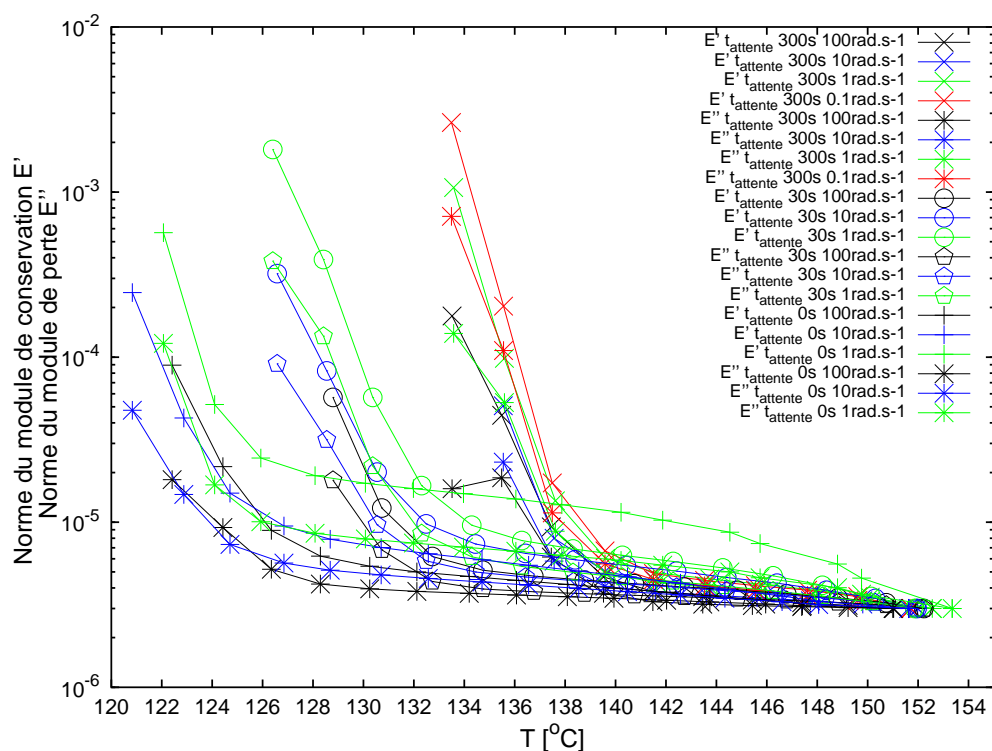


FIGURE D.22 – Propriétés mécaniques normées versus températures - PPR10232 - différents temps d'attente et différentes fréquences

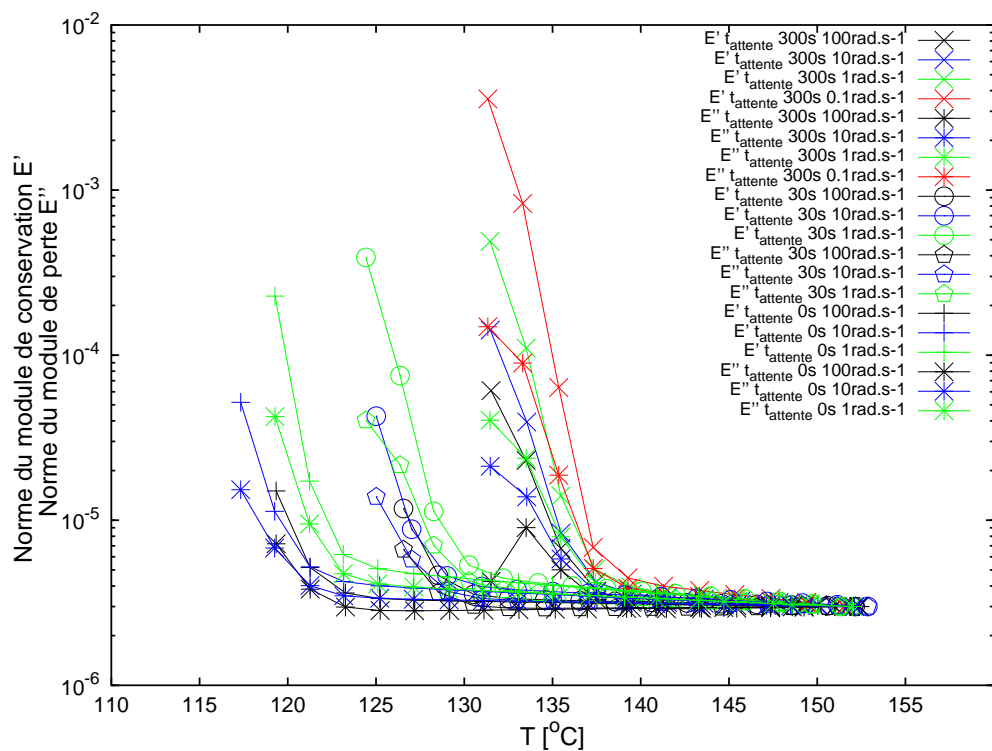


FIGURE D.23 – Propriétés mécaniques normées versus températures - PPR3221 - différents temps d'attente et différentes fréquences

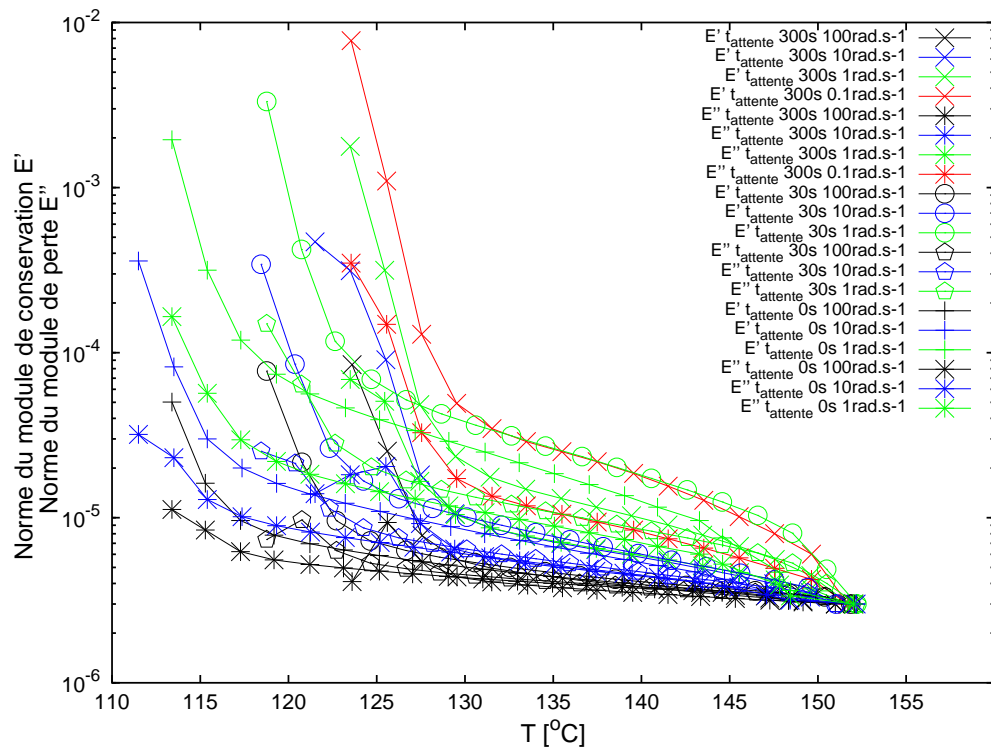


FIGURE D.24 – Propriétés mécaniques normées versus températures - MR10MX0 - différents temps d'attente et différentes fréquences





FOLIO ADMINISTRATIF

THÈSE SOUTENUE DEVANT L'INSTITUT NATIONAL  
DES SCIENCES APPLIQUÉES DE LYON

NOM : Biglione

DATE de SOUTENANCE : 07/10/2015

Prénoms : Jordan

TITRE : Simulation et Optimisation du Procédé d'Injection Soufflage Cycle Chaud

NATURE : Doctorat

Numéro d'ordre : AAAAISALXXXX

Ecole doctorale : MEGA

Spécialité : Mécanique

RESUME : Le procédé d'injection soufflage est rendu accessible aux presses d'injection standard à travers le procédé d'injection soufflage cycle chaud, sans stockage puis réchauffe de la préforme. Le but étant de rendre accessible la production de petites séries de pièces creuses à des entreprises possédant un parc machine de presse à injecter. Les pièces sont réalisées en polypropylène et sont soufflées juste après avoir été injectées. Ce processus implique que la préforme se doit d'être suffisamment malléable pour être soufflée mais suffisamment visqueuse pour éviter de se rompre durant la phase de soufflage. Ces contraintes conduisent à une fenêtre de mise en œuvre réduite, comprise entre la température de fusion du polymère et la température de cristallisation, soit le domaine où le polypropylène est à l'état amorphe et suffisamment froid pour avoir une viscosité conséquente sans cristalliser.

Ce procédé cycle chaud implique des gradients de température, de grands taux d'étirages et d'importantes cinétiques de refroidissement. Des mesures de rhéométrie à l'état fondu sont réalisées pour identifier le comportement de la matière dans la plage de température du procédé, de même que des tests de calorimétrie différentielle. L'observation du procédé et l'étude de la cristallisation du matériau permettent de supposer que ce dernier reste à l'état fondu durant la phase de soufflage. Un modèle rhéologique de Cross est utilisé, avec la dépendance thermique prise en compte par une loi d'Arrhénius. Le procédé est simulé à l'aide d'un logiciel de calcul par éléments finis dédié aux écoulements de fluides complexes (POLYFLOW) dans l'espace de travail ANSYS Workbench. La géométrie autorise une approche axisymétrique, facilitant ainsi la modélisation. Le calcul transitoire est lancé sous conditions anisothermes et l'auto-échauffement est considéré. Des études de sensibilité sont réalisées et révèlent l'influence de paramètres procédé tels que le comportement du matériau, la pression de soufflage et le champ de température initial. Des mesures d'épaisseurs sont réalisées en utilisant une méthode de traitement d'image permettant l'analyse des images numérisées de pièces découpées et des images issues de tomographie X des pièces. Les résultats simulés sont comparés aux mesures expérimentales. Le modèle présente les mêmes tendances que les mesures. L'existence de déformations élongationnelles, mais aussi par cisaillement lors du soufflage après contact avec le moule, est discutée.

Une boucle d'optimisation est mise en place afin de déterminer numériquement la géométrie optimale de préforme. Des points de contrôle sont placés le long de la préforme et l'algorithme d'optimisation modifie les épaisseurs à ces points.

MOTS-CLÉS : injection soufflage, calcul par éléments finis, polypropylène, rhéométrie dynamique, dma, cristallinité, mesure d'épaisseurs, copolymère aléatoire

Laboratoire (s) de recherche : LaMCoS – UMR5259

Directeur de thèse: Yves Béreaux, Jean-Yves Charneau

Président de jury : Jean-Marc Haudin

Composition du jury : Jean-Marc Haudin, Fabrice Schmidt, Noëlle Billon, Christian Carrot, Yves Béreaux, Jean-Yves Charneau